АКАДЕМИЯ НАУК СССР ИНСТИТУТ БИОФИЗИКИ

СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ ИНСТИТУТ ХИМИИ ТВЕРДОГО ТЕЛА И ПЕРЕРАБОТКИ МИНЕРАЛЬНОГО СЫРЬЯ ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ

ДИФРАКТОМЕТРИЯ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Ответственный редактор кандидат физико-математических наук Г. Н. Кулипанов



НОВОСИБИРСК «Н А У К А» СИБИРСКОЕ ОТДЕЛЕНИЕ 1989 Авторы

В. В. Болдырев, Н. З. Ляхов, Б. П. Толочко, А. А. Вазина, Н. А. Мезенцев, В. Ф. Пиндюрин, М. А. Шеромов, А. Г. Хабахпашев

Дифрактометрия с использованием синхротронного излучения/Болдырев В. В., Ляхов Н. З., Толочко Б. П. и др.— Новосибирск: Наука. Сиб. отд-ние, 1989.— 145 с. ISBN 5—02—028690—7.

Книга содержит обзор повой техипки дифракционного эксперимента для пспользования спихротроиного излучения (СИ) в исследованиях по химии твердого тела, матерпаковедснию, биологии, механо- и знектрохимии. Описаны монохроматоры, фокуспрующие зеркала, коллиматоры, детекторы и другое оборудование, разаботанное для экспериментов с СИ. Обсуждаются эксперименты, ностаповка которых возможна только при псользовании ушикальскойств СИ: высокой интеисивности, узкой паправленности, управляюной временной структуры, непрерывного спектра излучения.

Монография предназпачена для материаловедов, химиков, физиков, биофизиков, металлофизиков.

Ил. 88. Библиогр.: 260 пазв.

Рецензепты

капдидаты физико-математических наук Ю. Т. Павлюхии, Г. С. Юрьев

Утверждено к печати Институтом химии твердого тела и переработки минерального сырья СО АН СССР

Д¹⁷⁰⁷⁰⁰⁰⁰⁰⁰⁻⁸²⁰163-89, кн. 2

С Коллектив авторов, 1989

ISBN 5-02-028690-7

Синхротропное излучение (СИ) стало мощным средством в научных исследованиях. В Советском Союзе основным местом проводения работ с СИ является Спбирский центр СИ, организовлиный на базе лабораторий Института ядерной физики (ИЯФ) СО АН СССР. Здось выполняется большая программа, имеюцая важное вначение для фундаментальных исследований в физике, химии, катализе, биологии, материаловедении, а также для разработки новых технологий при решении различных ирикладиых задач в микроэлектропинке, медицине, гелотони.

В И́ЛФ СО АН СССР работают дна пакопителя: ВЭПП-2M (встречные электрон-позитронные цучки) с элергией 800 МэВ и ВЭПП-3 с элергией 2,2 ГэВ. Первый служит источником СИ в ульграфиолстовой области, второй — в рептеновской. Оба вакопителя создавались для решения задая физики высоких элергий, а работы с СИ — это рациональная «утилизация» неизбежных потерь, обусловленных движением электропов в магнитном поле.

Эксперименты с СИ на ВЭШІІ-З ведутся в специально оборудованном бункере (см. рисупок), надежно защищенном от излучения. К копцу 1988 г. в бункере уставовлево десять экспериментальных стапций: рентеновского флуоресцентного анализа, рептеновской микроскопии, топографии, литографии, EXAFSспектроскопии, анинографии, аномального расселныя (совмещена



1 — монохроматоры и экспериментальные станции: 2 — Лауэ-дифрандии, 3 — апомального рассониии, 4 — флуоресцентного анализа, 5 — рентеновской минроскоции, 6 — крысталяографии, 7 — малоутнового рассониии, 3 — дифрандионного кино, 9 — топографии, 10 — ЕХАРЗ-спектроскопии и спектроскопии высоного временного разрешения, 11 — литографии, 12 — ангиортафии, 13 — номитововского рассонията, со станцией Лауэ-дифракции), малоуглового рассеяния (совмещева со станциями кристаллографии и дифракционного кино), спектроскопии высокого временного разрешения, комитоповского рассеяния.

Дифрактометрия с использованием СИ позволяет нодойти на новом качественном уровие к решению следующих проблем: 1) регистрация дифратированного излучения при больших $S = 2 \sin \theta / \lambda$ (θ — угол дифракции, λ — длива волны); 2) регистрация дифрагированного излучения при малых S; 3) получение рентенограмм от микроскопических объектов; 4) регистрадия рептенограмм с высоким угловым разрешением; 5) исследование кинетики быстропротекающих структурных изменений; 6) исследование структурных измешений в объеме кристалла; 7) реализация могода « θ = const»; 8) реализация метода аномального рассеяния для широкого ряда элементов; 9) корректный учет поляризационного фактора; 10) подбор оптимальной дляны волик излучения для уменьшения влялиця флуоросдеяция.

Для решения перечислепных проблем имеются принципиальные возможности, обусловленные свойствами СИ. Однако для их практической реализации необходимо создание специализированных экспериментальных установок, разработка же универсалькой станции, где одновременно решались бы все эти задачи, невозможна.

В Сибирском центре СИ накоплен достаточно большой опыт по постановке дафракционных экспериментов. Более тридцати исследовательских групп вз разных городов страны, а также на ГДР, НРБ, ВНР и Индин провели в Цептре уникальные исследования, в результате которых получевы принципиально повые давные.

Ввод в 1991 г. в эксплуатацию бункера СИ ВЭПП-4 и повых акспериментальных станций позволит значительно увеличить число исследований. Настоящая книга дает представление о специфике работы с СИ и о возможностях дифрактометрии с использованием СИ.

ОСНОВНЫЕ ФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

1.1. ИСТОРИЧЕСКИЙ ОБЗОР

Природа синхротронного излучения связана с испусканием электромагнитных воли электропом (или другой заряженной частицей), движущимся с ускорением. Изучение свойств этого излучения началось с конца 19-го столетия А. Льенардом [1], который впервые рассмотрел мощпость излучения быстрого электрона, движущегося по окружности. В 1908 г. Г. Шоттом [2] были проведены исследования свойств излучения, испускаемого электроном, движущимся по окружности, в связи с попыткой объяснения дискретной природы атомных спектров. Формулы спектрально-углового распределения мощности излучения релятивистского заряда, движущегося по окружности, получепные Шоттом, в то время представляли собой академический интерес; лишь через 40 лет в связи с вопросом об излучении заряда, движущегося по окружности с макроскопическим радиусом, возпикла потребность в их практическом применении. В 1944 г. Д. Д. Ивапенко и И. Я. Померанчук [3] обратили внимапие на возможность парушения пормальной работы индукционного ускорителя в связи с сипхротронным излучением.

В 1946 г. Д. Блюйтт [4], изучавший радиационные потери в бетатроне, косаенио обнаружил синхротровное излучение по сокращению радиуса орбиты электрона. Можно было бы эти эксперименты считать доказательством реального существования излучения и даже назвать последнее бетатронным, однако визуального наблюдения излучения так и не удалось провести. Как выяспилось в дальдейшем (Л. А. Ардимович, И. Я. Померанчук, 1945 г. [5]), излучение электрона в экспериментах Д. Блюйтта соответствовало видимой области, а поиски излучения велись в имкроволновом диапазоне.

Визуальное наблюдение излучения было проведено в 1947 г. Скотосм и Хабером [6] на снихротроне «Дженерал электрик» бо время наладочных работ, когда с небольшого участка камеры, в которой вращались электроны, было снято металлизированное покрытие. В 1948 г. Д. И. Иваненко и А. А. Соколов [7] описали спектрально-угловые характеристики излучения более простыми зависимостлми, чем формула Шотта. Тот же результат был получен Д. Шингером [8]. Группа г. Поллока [9-11] экспериментально исследовала распределение интепсивности излу-

чения в области длин воли от 3500 до 7000 Å для электронов, ускоренных до энергий 30-80 МэВ. Д. Томбулиан и Р. Гартман [12] провели детальные измерения спектра в области 400— 60 Å при максимальной эпергии электропов 320 МзВ. А. А. Соколовым и И. М. Терповым [13] было иоказано, что спихротроппое палучение обладает сильной липейной поляризацией. Теоретические формулы, характеризующие липейной и круговую поляризацию, были подтверждены в опытах Ф. А. Королева с соавторами [14-17].

Начиная с 1964 г. в пашей стране и за рубежем создаются новые машины — электронные (позитронные) накопители, которые отличаются от синхротронов тем, что могут работать в постоявном установившемся режиме. Получение сверхвысокого вакуума в камере накопителя позволило электронам, движущимся внутри камеры, часами «жить», двигаясь по своей орбите. Компенсацию потерь энергии электрона на синхротронное излучение проводят с помощью специального устройства - ВЧ-резонатора. Электрон, двигаясь в накопителе, совершает поперечные колебация относительно равновесной траектории и энергетические колебания относительно равновесной эцергии. Благодаря синхротропному излучению и поперечные, и энергетические колебания затухают. Этот факт имел большое значение пля пальнейшего развития электропных накопителей в физике высоких энергий. Затухание размеров сгустка электронов до нуля привело бы к резкому увеличению когерентных потерь на синхротропное пзлучение и к потере пучка. Однако в силу квантового характера синхротронного излучения имеют место обратные затуханню процессы — диффузионный рост поперечных амплитуд и энергетического отклонения от равновесного значения. В результате этпх двух процессов в накопителе существуют установившийся размер и угловой разброс электронного пучка.

1.2. ОСНОВНЫЕ СВОЙСТВА ИЗЛУЧЕНИЯ ЭЛЕКТРОНА, ДВИЖУЩЕГОСЯ ПО КРУГОВОЙ ОРБИТЕ

Качественно картину излучения заряда при движении по окружности можно представить себе следующим образом. Для того чтобы при движении по окружности картина поля оставалась стационарной, необходимо соблюдение условия: электрои и его электростатическое поле должны двигаться по окружности с одной и той же угловой скоростью. Очевидно, что на некотором расстояния х по радпусу от орбиты (рис. 1.1) и далее электрическое поле должно двигаться с линейной скоростью, большей скорости света. Значение этого расстояния можно вычислить из условия

$$\frac{v}{R} = \frac{c}{R+x}$$
 and $x = \frac{Rc}{v} \left(1 - \frac{v}{c}\right) \approx \frac{R}{2\gamma^2}$,

Рис. 1.1. Схема мехаппэма возпикновения пояя излучения при движспии электрона по окружности.

где $\gamma = E_0/mc^2$ — релятивнотский фактор (при условии $\nu \approx c$). Поскольку скорость распространения электромагнитного поля не может быть выше c, па всех расстояниях, бблыших x, электричоское поле электрона можно трактовать как поле излучения.

Таким образом, при движения по окружности релятивистской заряженной частицы часть электрического поля упосится в виде спихротронного излучения. Одновременно с этим идет восстановление поли при использовании энергии продольного движения электрона. Для оценки длительности поля излучения используем известный из электродниваники факт, что характерное время изменения электрического поля при пролете мимо наблюдателия заряженной частицы со скоростью и по прямой, отстоящой от наблюдателя на расстоянии л. равно

$$\Delta t_{xap} = x/\gamma v \simeq R/2\gamma^3 c.$$

Время, за которое это пэлучение формируется, можно оценить из кпнематической связя между излученной электроматнитной волной с характерным временем изменения для впешнего наблюдателя и электроном, движущимся со скоростью и в том же направлении:

$$\Delta t_{\rm rap} \cdot c = (c - v) \cdot \tau_{\rm pop}.$$

Отсюда время формирования излучения и длина орбиты, на которой излучение формируется, равны

$$\tau_{\text{dop}} \approx R/\gamma c; \quad l_{\text{dop}} \approx R/\gamma.$$

Из соотношений пеопределенностей для волны можпо оценить спектральные характеристики излучения:

$$\omega_e \cdot \Delta t_{xap} \sim 1.$$

Характерная частота и соответственно длина волны излучения равны: $\omega_e \sim \gamma^a \cdot \omega_0$, $\lambda_e \sim R/\gamma^3$, где ω_0 — частота обращения электрона в накопителе.

Для оценки мощности излучения посчитаем поток эноргии электрического поля электронов для расстояний, больших $x = R/2^{-2}$:

$$P = \frac{W}{\tau_{\phi o p}} = \frac{\frac{1}{4\pi} \cdot \int E^2 dv}{\tau_{\phi o p}} = \frac{e^2 \gamma^4 c}{2R^2}.$$

7





Рис. 1.2. Схема кинематической связи между Рис. 1.3. Мгновенная картивременными интервалами излучения $\Delta t'$ и па углового распределения временными интервалами регистрации этого излучаемой излучения от релятивистского электрона Δt. ским электроном мошности.

релятивист-

Точное выражение для мощности излучения будет

$$P = \frac{2}{3} \cdot \frac{e^2 c \gamma^4}{R^2}.$$

Основные спектральные и угловые свойства синхротроппого излучения определяются из кинематических соотношений между излученной электромагнитной волной и движущимся релятивистским электроном. Для иллюстрации этого рассмотрим движущийся электрон в разпые моменты времени 1, 2, 3, разделенные временем dt', в которых электрон испускает электромагнитную волну (рис. 1.2). Тогда наблюдатель, регистрирующий излучение в направлении скорости электрона. измерит времена межлу излучениями:

$$dt = (1 - v/c) dt'.$$

Если наблюдение производится в направлении вектора n, то время между излучениями будет равно:

$$dt = \left(1 - \frac{\overrightarrow{n \cdot v}}{c}\right) dt' = \left(1 - \frac{v}{c}\cos\theta\right) dt',$$

где 0 - угол между направлением движения и вектором наблюдения. Пля малых углов $\theta \ll 1$ и $v \sim c$ связь между интервалами регистрации излучения можно написать в виле

$$dt \approx \frac{dt'}{2} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2 \right).$$

Получается концентрация излученной мощности в узком конусе вдоль вектора скорости электрона и и резкое увеличение



частоты (эффект Допплера). Мгновенная картина углового распределения взлучаемой мощпостя приведена на рис. 1.3 и описывается формулой

$$dI = \frac{e^2 w^2}{4\pi c^3} \left[\frac{1}{\left(1 - \frac{v}{c} \cdot \cos \theta\right)^4} - \frac{\sin^2 \theta \cdot \cos^2 \varphi}{\gamma^2 \left(1 - \frac{v}{c} \cos \theta\right)^6} \right] d\Omega,$$

где w — ускорепие электрона; θ — угол между v и n; φ — угол, отсчитываемый от плоскости (w v). Поля излучения, создаваемые дляжущимися зарядами, можио описать известными формулами

$$\vec{E} = \frac{e}{c^2} \cdot \frac{d^2 \vec{n}}{dt^2} \Big|_{t'}; \quad \vec{H} = [\vec{n} \cdot \vec{E}],$$

где время t и запаздывающее время t' связаны друг с другом соотношением

$$t = t' + \frac{\left|\vec{L} - r_0(t')\right|}{c}.$$

Поля излучения электрона, движущегося по окружности радауса R, в зависимости от угла положения электрона на орбите α и угла φ (вертикальный угол наблюдения к плоскости орбиты показан на рис. 1.4) можию описать формулами

$$E_{\sigma} = \frac{eR\omega_{0}^{2}(\cos\alpha - \beta\cos\psi)}{c^{2}L\left(1 - \beta\cos\alpha\cos\psi\right)^{3}};$$
$$E_{\pi} = \frac{eR\omega_{0}^{2}\sin\alpha\sin\psi}{c^{2}L\left(1 - \beta\cos\alpha\cos\psi\right)^{3}},$$

где E_{σ} , E_{π} — компоненты электрического вектора \vec{E} ; о лежит в плоскости орбиты, π — перпендикулярно с-компоненте и вектору наблюдения \vec{n}_0 ; $\beta = v/c$; $\alpha = \omega_0 t'$; ω_0 — частота обращения электрона по орбите.

Зависимость полей E_{σ} и E_{π} от времени показана на рис. 1.5. Поля имеют характерный всплеск при углах α и ψ , близких





Puc. 1.5. Временная зависимость полей излучения E_σ и E_π.

к пулю. Зпамепателя в выражениях компонент поля при этих углах можно заменить формулами

$$(1 - \beta \cdot \cos \alpha \cdot \cos \psi)^{\mathrm{s}} = \left[\frac{1}{\gamma^{2}} + \psi^{2} + (\omega_{0}t')^{2}\right]^{\mathrm{s}}$$

Для точного описания спектрально-угловых зависимостей поля излучения воспользуемся разложением в ряд Фурье [18]

$$\begin{split} \overrightarrow{E}_{m} &= i \, \frac{e \cdot n \cdot u_{0}}{c \cdot L \cdot T} \int_{T} \left[\overrightarrow{n}_{0} \cdot \left[n_{0} \times \frac{v}{c} \right] \right] e^{i m u_{0} t(t')} dt', \\ t &= t' + \frac{|\overrightarrow{L} - r_{0}(t')|}{c}. \end{split}$$

где

Для компонент поля о п я, учитывая ревкую временную зависякость поля излучения, спектрально-угловое распределение поля моятно записать следующим образом:

$$\begin{split} E_{m\sigma} &= e \cdot m \cdot \omega_0 \frac{e^{im\frac{\Theta}{cL}}}{cL} \cdot \frac{1}{\pi \sqrt{3}} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \psi^2 \right) \cdot K_{2/3} \left(\left(\frac{1}{\gamma^2} + \psi^2 \right)^{3/2} \cdot \frac{m}{3} \right), \\ E_{m\pi} &= im\omega_0 \cdot \sin \psi \cdot e \cdot \frac{e^{i\frac{\omega_0}{m}}}{cL} \frac{1}{\pi \sqrt{3}} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \psi^2 \right)^{1/2} \cdot K_{1/3} \left(\frac{1}{\gamma} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \psi^2 \right)^{3/2} \right), \end{split}$$

где K_{2/3} в K_{1/3} — функции Макдональда.

Угловое распределение *m*-гармоники интенсивности излучения будет оппсываться формулой

$$\begin{split} \frac{dI_m}{d\Omega} &= \frac{ae^2}{R^3} \frac{m^2}{6\pi^3} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \psi^2\right)^2 \left[K_{2/3}^2 \left(\frac{m}{3} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \psi^2\right)^{3/2}\right) + \\ &+ \frac{\psi^2}{\frac{1}{\gamma^2} + \psi^2} \cdot K_{1/3}^2 \left(\frac{m}{3} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \psi^2\right)^{3/2}\right)\right]. \end{split}$$

Асимптотическое поведение функции $\frac{dI_m}{dQ}$ при $\psi = 0$, при $m \gg \gamma^3$ ц $m \ll \gamma^3$ выражается функциями

$$\left.\frac{dI_m}{d\Omega}\right|_{\psi=0} = \begin{cases} \sim m^{2/3} & \text{при } m \ll \gamma^3, \\ & \\ \sim e^{-\frac{2m}{3\gamma^3}} & \text{при } m \gg \gamma^3. \end{cases}$$

Угловые распределения (в миллирадианах) для различных участков снектра оппсываются зависимостями:

$$\begin{split} \psi_{\lambda} &= 0,66 \left(\frac{\lambda \cdot (\overset{\circ}{A})}{R_{(\lambda i)}}\right)^{1/3} & \text{ при } \lambda > \lambda_{c}, \\ \cdot \psi_{\lambda_{c}} &= \frac{0,82}{E \cdot (\Gamma_{0}B)} & \text{ при } \lambda = \lambda_{c}, \\ \psi_{\lambda} &= 0,158 \sqrt{\lambda \cdot \overset{\circ}{A} \cdot B \cdot (T)} & \text{ при } \lambda < \lambda_{c}. \end{split}$$

(λ_c = 4πR/(Зγ³) — крптическая длина волны.)

На рис. 1.6 приведено угловое распределение иптенсивностей для разных поляризаций для различных участков спектра. Спектральное распределение иптенсивпости излучения, проинтегрированное по вертикальному углу ф, имеет вид

 $dI = P_t \cdot \eta(y) \, dy,$

где $P(t) = \frac{2}{3} \cdot \frac{ce^2}{p^2} \cdot \gamma^4$ — полная излучаемая энергия; $\eta(y) =$ $= \frac{9\sqrt{3}}{8\pi} y \int_{\infty}^{\infty} K_{6/3}(x) \, dy$ -нормированная па I универсальная снектральпая фупкция; $y = \frac{\omega}{\omega_c}$; $\omega_c = \frac{3}{2} \omega_0 \gamma^3$,

График η(y) приведен на рис. 1.7. При y «1 функция η(y) может быть описана зависимостью

$$\eta(y) = \frac{9\sqrt{3}}{2^{7/3}\pi} \cdot \Gamma\left(\frac{2}{3}\right) \cdot y^{1/3},$$

а при $y \gg 1 - \eta(y) = \frac{9\sqrt{3}}{8\sqrt{2\pi}} \sqrt{y} \cdot e^{-y}$.



Рис. 1.6. Угловые распределения питенсивностей излучения I_o и I_n для разных участков спектра.



Рис. 1.8. Спектры СИ из вигглера накопителя ВЭПП-3 (а) и из накопителя ВЭПП-4 (б) в вакууме, через Ве-фольгу. а-Е = 2 ГъВ. H = 20 кГс, λ_c = 2,33 Å; 6-E = 5,5 ГъВ. H = 12 кГс, λ_c = 0,51 Å.

Для разных поляризаций интенсивность излучения, проинтегрированная по углу ф, выражается формулами

$$\begin{split} dI_{\mathfrak{o}} &= P_t \cdot dy \cdot \frac{9 \sqrt{3}}{16\pi} \cdot y \Biggl(\int\limits_{y}^{\infty} K_{\mathfrak{b}/\mathfrak{d}}(x) \, dx + K_{\mathfrak{d}/\mathfrak{d}}(y) \Biggr)_{\mathfrak{c}} \\ dI_{\pi} &= P_t \cdot dy \cdot \frac{9 \sqrt{3}}{16\pi} \cdot y \Biggl(\int\limits_{y}^{\infty} K_{\mathfrak{b}/\mathfrak{d}}(x) \, dx - K_{\mathfrak{d}/\mathfrak{d}}(y) \Biggr)_{\mathfrak{c}} \end{split}$$

Для практических расчетов некоторых параметров пучка СИ полезны следующие формулы [19].

Мощность пучка СИ, просуммированная по всем длинам воли, проинтегрированная по вертикальному углу, в миллирадиан горизонтального угла:

$$P = 14 \cdot \frac{E^4 \cdot I}{R} = 4,2B \cdot E^3 \cdot I.$$

(Здесь и далее Р в Вт/мрад; Е в ГэВ; І в А; Я в м; В в Т.)

Поток квантов всех эпергий, излучаемых в миллирадиан горизоптального угла: $N_{z} = 1,3 \cdot 10^{17} \cdot E \cdot I$. (Здесь N_{z} в фот/(с мрад).)

Спектральная мощность пучка СИ на дляне волны λ в относительном интервале длян волн $\Delta\lambda/\lambda$:

$$P = 0.62 P_{\Sigma} \cdot \frac{\lambda_c}{\lambda} \cdot \eta \left(\frac{\lambda_c}{\lambda} \right) \cdot \frac{\Delta \lambda}{\lambda}, \quad \lambda_c = \frac{18.6}{E^2 \cdot B}.$$

(Здесь λ. в Å.)

Спектральный поток квантов на длине волны λ в относительном иптервале длин волн $\Delta\lambda/\lambda$:

$$\dot{N}_{\lambda} = 2,46 \cdot 10^{16} \cdot I \cdot E \cdot \eta \left(\frac{\lambda_c}{\lambda}\right) \cdot \frac{\Delta \lambda}{\lambda}.$$

(Здесь N₁ в фот/(с мрад).)

На рис. 1.3, а, б приведены графина спектров выведенного излучения из накопителей ВЭПП-З и ВЭПП-4 для развых значений магнитного поля в точке излучения. Из накопителя ВЭПП-3 вывод СИ производится с помощью специального устройства — виглера для генерации СИ с полем ~2T. В ближайшем будущем предполагается замена на виглер со сверхпроводящими обмотками с полем ~6,5 Т. На накопителе ВЭПП-4 вывод излучения будет производиться из магнитного поля ~1 Т.

1.3. ИЗЛУЧЕНИЕ ИЗ ОНДУЛЯТОРОВ И ВИГГЛЕРОВ

На существующих накопителях электропов или позитронов используются специальные устройства для генерации синхротронного излучения. Такие устройства применяются для слещения спектра в нужную область, увеличения плотности излучения, получения котерентного и монхорходатического излучения. Устройство представляет собой магнит с периодически меняющимоя магнитным полем. Магнитное поле илоского ондучлюра ния многиопонсеного виглуера можно представнть в виде

$$B=B_0\sin\frac{2\pi S}{\lambda_0},$$

где B_0 — амплитуда изменения магнитного поля; λ_0 — нериод измеления поля; S — продольвая координата. Траектория движения электрона в таком поле представляет собой спиусоиду (рис. 1.9) с максимальным отклопением от оси

$$x_0 = \frac{eB_0\lambda_0^2}{4\pi^2 m_0 c^2 \gamma}$$

и с максимальным отклонением по углу

$$\alpha_0 = \frac{eB_0\lambda_0}{2\pi m_0 c^2\gamma}.$$

В условиях слабого магнитного поля B₀ формирование излучения происходит с длин больше A₀ или порядка A₀. Такие режимы работы устройства и излучение называются ондуляторны м₄, а само устройство — ондулятором. Длину волны излучения



Puc. 1.9. Трасктория движения электрона в ондуляторе.

Рис. 1.10. Характерное сцектральное рас-I пределение интепсивности ондуляторного палучения: ξ = λ_e/2γ²λ, где λ₂ — период ондулятора; λ — длина волны излучения. в паправлении оси на гармонике п можно выразить формулой [20] $\lambda_n = \frac{\lambda_0}{2n^2n} \left[1 + \frac{(\alpha_0 \gamma)^2}{2} \right]$ со степенью монохроматичности ла 01 этой длине волны

$$\frac{\Delta\lambda}{\Delta\lambda_n} \sim \frac{1}{N \cdot n},$$

٠

где N - число периодов ондулятора.

Угловая направленность излучения находится из зависимости $\Delta \theta \sim 1/\gamma V \overline{N}$.

Спектр излучения из ондулятора имеет характерную изрезанность с максимумами интенсивности на длинах воли λ. (рис. 1.10). Для оппсания сцектра можпо ввести параметр ондуляторностп К:

$$K = \alpha_0 \gamma = B_0(\mathbf{T}) \cdot \lambda_0 \quad (\mathbf{CM}).$$

Номер гармоники, на которую приходится максимум питенспвности, определяется формулой nmax ~ K3.

С увеличением магнитного поля в ондуляторе ($K \gg 1$) спектр переходит в спектр СИ из поворотного магнита, и устройство в этом случае называется многополюсным вигглером. или «змейкой». Плотность излучения из такого устройства в N_п раз больше, чем из одного магнита, где N_п — число полюсов вигглера.

В основном для смещения спектра СИ в более жесткую часть используются внитлеры с малым количеством полюсов. В этом случае обычно делают устройство из трех магнитов, причем центральный магнит имеет сильное поле, а два других используются для компенсации искажения орбиты в накопителе. Постановка сверхпроводящих магиптов с полем 4-7 Т на накопители с пизкой энергней 0,5-1 ГэВ дает возможность получать излучение в рентгеновской области.

1.4. СПЕЦИАЛИЗИРОВАННЫЕ НАКОПИТЕЛИ ДЛЯ ГЕНЕРАЦИИ СИ

Первое поколепие пакопителей электронов и позитронов было создано в 60-70-е гг. и предназначалось для экспериментов по физике высоких эпергий. Эксперименты с СИ, начатые в 70-е гг., проводятся в основном в «паразитном» режиме. Однако в конце 70-х - начале 80-х гг. началось сооружение второго поколения накопителей — специализированных источников СИ, создание центров СИ, где используются различные методики научных и прикладных исследований. Такие центры существуют в США, Франции, Англии, Японии, ФРГ [21]. Уже пачато строительство накопителей третьего поколения (Франция - Европейское общество, США) с энергией 6-8 ГэВ. Основные задачи. которые ставятся перед создателями этих установок, следующие: 1) получение квазимонохроматических ондуляторных пучков жесткого рентгеновского излучения (Apra ~ 1 Å); 2) получение предельно малого эмиттанса электронного (позитронного) пучка: 3) получение ондуляторных пучков в различных областях спектра - вакуумного ультрафиолета, мягкой и жесткой рентгеновской области.

Решение такой задачи, как получение предельно малого эмиттанса ex ~ h, приводит к пеобходимости создания пакопителей с периметром 1-3 км с большим числом магнитных элементов. так как ели ~ E²ф³, где Е — энергия электронов в накопителе, ф — угол поворота в одном магните, и к постановке на эти накопители специальных вигглеров для увеличения затухания.

Несомненно, что создание указанных накопителей позволит провести уникальные эксперименты во всех областях науки и техники, постановка которых па имеющейся в настоящее время аппаратуре невозможна.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Lienard A. // L'Elect.—1898.— V. 16.— P. 5.—14.
 Schott G. A. // Ann. Phys.— 1907.— V. 24.— P. 635.—660.
 Ivanenko D. D., Pomeranchook I. J. // Phys. Rev.— 1944.— V. 65.— P. 343— 348.
- 4. Blewett J. P. // Phys. Rev.— 1946.— V. 69.— Р. 87—92. 5. Арцимович Л. А., Померанчук И. Я. // ЖЭТФ.— 1946.— Т. 10.— С. 379— 382
- 6. Baldwin G. G. // Phys. Today. 1975. V. 28. Р. 9—13. 7. Иваненко Д. Д., Соколов А. А. // Докл. АН СССР. 1948. Т. 59. C. 1551-1553.
- 8. Schwinger J. // Phys. Rev.- 1949.- V. 75.- P. 1912-1916.
- 9. Elder F. R., Pollock H. C. // Phys. Rev.- 1947.- V. 71.- P. 829-833.
- 10. Elder F. R., Pollock H. C. // J. Appl. Phys. 1947. V. 18. P. 810-814. 11. Elder F. R., Langmuir R. V., Pollock H. C. // Phys. Rev. 1948. V. 74. --
- P. 52—60.
- 12. Tamboulian D. H., Hartman P. L. / Phys. Rev.- 1956.- V. 102.- P. 1423-1428.
- 13. Соколов А. А., Тернов И. М. // ЖЭТФ.- 1955.- Т. 28.- С. 473-477.
- 14. Королев Ф. А., Куликов О. Ф. // ЖЭТФ.— 1962.— Т. 43.— С. 1653—1660. 15. Королев Ф. А., Куликов О. Ф. Оптика и спектроскопия.— 1960.— Т. 8.—
- C. 3-9. 16. Королев Ф. А., Ершов А. Г. // Докл. АН СССР.- 1960.- Т. 143.-
- C. 314-317.
- 17. Королев Ф. А., Ершов А. Г. // Докл. АН СССР.- 1956.- Т. 110.- С. 542-546.
- 18. Тернов И. М., Михайлин В. В., Халилов В. Р. Сипхротронное излучение и его применение.- М.: Изд-во Моск. ун-та, 1980.- 276 с.

- Куляпанов Г. П., Скринский А. Н. // УФН.— 1977.— Т. 122.— С. 369—418.
 Кезерашвили Г. Я., Дисенко А. П., Хорев В. М. и др. // Вессоюз. совет, по_пользованию санхортовного вахучения: СИ-82.— Новосибирск, 1982.- C. 109-111.
- 21. Синхротронное излучение. Свойства п применение/Под ред. К. Кунца.-М.: Мир. 1981. — 526 с.

Глава 2

АППАРАТУРА ДЛЯ ДИФРАКТОМЕТРИИ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

2.1. МОНОХРОМАТИЗАЦИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ

В рептгенографических экспериментах обычно используется монохроматическое излучение, поскольку теория рассеяния рентгеновских лучей построена и развивается для строго монохроматического получения. СИ, как указывалось выше, имеет широкий сисктральный состав, поэтому при проведении рентгеноструктурных иссленований возникает необходимость в его монохроматизации. В настоящее время в структурном дианазоне длин воли в качестве монохроматоров чаще всего используют кристалл-цифракционные диспергирующие элементы. Их применение основано на способности кристаллов отражать падаюшее па них рептгеновское излучение согласно закону Вульфа -Epprra:

 $2d_{n}\sin\theta = \lambda$.

где $d_n = d/n$ — межплоскостное расстояние рабочей системы кристаллографических плоскостей, на которых происходит дифракция; n=1, 2, ...- порядок отражения; θ-угол скольжения падающего и дифрагированного излучения к указанной системе плоскостей; λ — длина волны дифрагирующего излучения. Ограничение дпапазона углов скольжения дифрагирующего на кристалле пзлучения позволяет получить монохроматизированный отраженный пучок. Вопросы расчета рептгенооптических схем дифракционного эксперимента и оптимального выбора кристаллов-монохроматоров для использования в работах с рептгеновскими трубками рассмотрены в работах [1-4]. Спихротронный источник излучения имеет, однако, ряд особенностей, которые не позволяют без соответствующей модификации перепосить на него рептгеновские схемы, предназначенные для работы с рентгеповскими трубками.

Схемы монохроматизации, используемые в рептгеноструктурном апализе, рассчитаны па выделение одной узкой спектральной «монохроматической» линен из характеристического линейчатого спектра материала анода. Схема монохроматизации полжна обеспечить необходимое угловое разрешение и максимальную плотость излучения при регистрации на фотопленку либо максимальную интепсивность излучения при регистрации квантовыми детекторами. Для монохроматизации ингроко расходлицихся или сходлщихся пучков используют фокусирующие ренттеновские схемы с наогнутыми кристалакани-монохроматорами, а для монохроматизации нерасходящихся пучков — схемы с плоскими кристаляами-монохроматорами.

Выду полвхроматичности СИ кристали-дифракционные монохроматоры должны направлять на исследуемый объект диспертврованный по углам участок спектра примерно постолиной спектральной плотности, соответствующий диапазону углов отбора ваучения монохроматором. Таким образом, разрепнающая способпость и светоспла схемы будут определяться специфической геометрией цеточника и геометрией коллимационной системы в отличие от рентгеновской трубки, где роль монохроматизации сводится к «чистке» характорислических липий от инирокого, но пятенсивного полихроматического фона. Положение, скорее, валоминает освовную задачу кристаля-дифракционного рентсевоспектрального наялиза, где также приходится анализировать реяттевовское пазучение шпрокого спектрального диапазона с несильно меняющейся интенсивностью.

Большое влияние па нараметры схемы монохроматизации оказывают физические свойства используемых кристаллов. В узком угловом интервале вбливы угла Брэгта ццельшая кристаллическая решетка ведет себя подобно зеркалу. Наиболее полно ее рептенооптические свойства характерпзуются с помощью кривой угловой зависимости коэффициента отражения лиоской волны. На практике часто пользуются такими нараметрами, как полушприна области отражения Ω , максимальный коэффициент отражения P_m и интегральное отражение $R_i \approx P_m \Omega$. В структурпом дапазоне длин волн для идеалькой решетки $P_m \approx 100$ %, а полуширина составляет несколько угловых секупд. Такие параметры действительно наблюдаются у совершенных кристаллов кремиця, гермавия, кварца.

Идеально симметричные кристаллы при отражении, по Броггу, не вызывают ушпрения дифратированного пучка длин воли, используемых в реплтеноструктурном анализе, интегральное отражение таких кристаллов пе превышает 10⁻⁴ рад, что ограничивает светосплу схемы монохроматизации. Интегральное отражение совершенного кристалла с асимметрией b возрастает пропорционально 6^{-1/2} из-за увеличения ширины распределения коаффициента отражения [5]. Угловая апертура схемы пропорционатька коэффициенту асимметрии кристалла b, т. е. дифрагированный поток излучения увеличивается пропорционально b^{1/2}, рост асимметрии кристалла отрашчен, с увеличением b возрастает поглощение излучения в кристалле [5].

Одпако большинство кристаллов содержит микроскопические нарушения структуры, которую можно представить состоящей из слегка разорнентированных микроблоков — мозанки. Мозанчность приводит к паденно P_m в цесколько раз и к увеличению полунпірним на 1—2 норядка. Бблацую или меньшую степень мозапичности можно придать также исходно совершенному мопокристалиу иутем механической поверхностной обработки: шлифовки или нолировки. Мозаичные кристалы используются в ренитенооптических схемах, пе тробующих разрешения в горизоитальной плоскости (лучше 1).

Интегральное отражение мозанчных кристаллов возрастает пропорционально $(1+b)^{-1}$ за счет увеличения коэффициента отралкения в максимузие [6]. Максимальное значение потока дифрагированного излучения достигается при коэффициенте асимметрии в несколько единия, и дальнейшее увеличение асимметрии практически не наменяет величины потока.

Для каждого конкретного случая можно рассчитать оптималыные рентгеноонтические нараметры кристалла-монохроматора и выбрать подходящий кристалл. Однако поскольку от синхротрона в пределах копуса излучения в каждом паправлении распространяется излучение с шпрокнм дианазоном длин воли приблизительно равной интенсивности, то выбор между идеальпым и мозачичым кристаллом также должен отличаться от случая рентгеновских трубок. При подборе кристалла помимо учета реитгенооптических свойств следует обращать внимание на его временцую стабильность и радиационную стойкость.

Особенно большое значение раднационная стойкость кристалла приобретаст при монокроматизации СИ, так как поток эзергии, надающий ца него, па 8-10 порядков больше, чем в случае рентгеновской трубки. Одна па основных причин радиационных зарядков, возпикающих под поннаврующих действие объемных зарядков, возпикающих под поннаврующих действием рентгеновских дучей. Поэтому высокую радиационную стойкость, как правлюо, имеют кристаллы с достаточно высокой проводимостью, т. е. металлические и полупроводниковые. Наиболее приемлемыми с точки эрения радиационной стойкость наялются хром, кремний, графит, а такие квари, обладающие, кроме того, высокой механический прочностью и влагостойкостью. В то же время ряд органическия монокристалов быстро разлагается при воздействия налучения.

2.2. ФИЛЬТРАЦИЯ ВЫСШИХ ГАРМОНИК

Кристаля-дифракционные диспергирующие элементы обладают способностью отражать под одним углом излучение не только с длиной волны λ_0 , по и с длинами воли λ_0/n , дифрагированное *n*-порядком рабочей системы кристаллографических плоскостей, в соответствии с уравнением $\lambda_0/n = 2d_n \sin \theta_0$. Это свойство может быть охарактеризовано коэффициентом подавляемоств $\Sigma = K_n/R_t$. В отличие от характеристического излучения трубки интенсивность дифрагированных гармоник λ₀/n синхротропного излучения может иметь величину одного порядка с интенсивностью основной длины волны и создавать собственную дифракционную картину объекта, затрудняя ето исследование.

При получении рентгенограммы коллагена [7] с использованием квариевого мопохроматора наряду с дифракционной картиной, обусловленной излучением с длиной волны λ, появляются дифракционные линии от излучения с λ/2. Поэтому при выборе кристалла необходимо учитывать величину его коэффициента подавляемости и, в частности, использовать равенство нулю интенсивности пля некоторых порядков отражения в соответствии с законом погасаний, как, например, для второго порядка отражений структуры типа алмаза. При использовании креминевого монохроматора с коэффициентом подавляемости для $\lambda/2$. близким к нулю, дифракционные линии, обусловленные излучением с длиной волны λ/2, отсутствуют. Для подавления высших гармоник в отраженном пучке перспективно использование явления полного внешнего отражения рептгеновского излучения от зеркала, установленного на пути СИ. Величина максимального угла полного внешнего отражения определяется формулой [8]

$$\varphi_{\text{make}} = 10^{-3} \cdot 1.64 \sqrt{\frac{\rho}{A} \left(z + \frac{2}{(\lambda_{\text{K}}/\lambda)^2 - 1}\right)},$$

где р — плотность материала зеркала; A — атомный вес; z — порядковый номер элемента, на которого сделано зеркало; $\lambda_{\rm K}$ — край поглощения элемента. При углах падения $\phi > \phi_{\rm маже}$ зеркало по но гражает излучение с длинами воли $\lambda \leqslant \lambda_0$.

Таким образом, для того чтобы псключить вторую гармонику $(1/2A_0)$ и все более короткие длины воли, достаточно поставять на пути пучка СИ зеркало под углом, превышающим $\phi_{\text{мысе}}$ для этой гармоники. Зеркало, установленное перед кристаллок-монохроматором, также существению уменьшает возможность радиационного повреждения кристалла, так как предотвращает попадание на него жесткой коротковолновой части первичного излучения.

Существует еще один способ уменьшения интенсивности гармоник. Можно добиться такого соотношения между режимом работы накопителя и рабочей длиной волны, при котором питенсивность излучения с длиной волны, кратлой λ , оказытвается много меньше питенсивности излучения с длиной волны λ . Для этого достаточно использовать длину волны λ , песколько меньшую $\lambda_{\text{мике}}$, так как интенсивность коротковолновой части спектра СИ резко падает с уменьшением длины волны.

Основываясь на проведенном рассмотрении, можно сказать, что ввиру особенностей СИ выбор рентгенооптической схемы монохроматизации и кристалла-мопохроматора, а также оптимизация их параметров являются самостоятельной методической задачей, развитие которой необходимо для использования потенциальных превиуществ СИ.

2.3. ОСОБЕННОСТИ РЕНТГЕНОВСКОЙ ОПТИКИ ПРИ РАБОТЕ С СИ

Вопросы рентгеновской оптики для использования СИ в малоугловых исследованиях рассмотрены в работах [9-12], где предлагаются кристаля-дифракционные схемы монохроматизации с использованием плоских [9] и пзогнутых асимметричных [10-12] монокристалялов. В [13] подробно обсуждаются различные рентгенооптические схемы и кристаллы-монохроматоры для обычных источников характеристического излучения — рентгеновских трубок.

Рептгенооптическая схема должна обеспечить наибольшую светосних при зацанной угловой разрешающей способности [14]. Разрешающая способность и светосила схемы монохроматизации СИ в зпачительной степени определяются особенностями источника и коллимационной системы [15, 16]. Ввиду конструктивных особепностей синхротронов и по соображениям радиационной безопасности расстояние от источника излучения до места расположения рентгецовских установок составляет от нескольких метров до нескольких десятков метров. Соответственно угловая расходимость пучка СИ оказывается незначительной как в горизонтальной плоскости электронной орбиты, где пучок формируется коллимационной системой в небольшом интервале углов вблизи осп пучка, так и в вертикальной, где помимо коллимационной системы расходимость ограничена также благодаря релятивистскому сжатию СИ вблизи плоскости электронной орбиты, т. е. выполняются условия паракснальности пучка СИ. Пропускание коллимационной системы, как и яркость источника СИ, обычно можно разложить на независныме составляющие в горизонтальной и вертикальной плоскостях соответственно. Если пренебречь пространственным разрешением детектора и дифракционными ограничениями из-за малости исследуемых образцов. то угловое разрешение дифракционной картины на детекторе в горизонтальной (S_x) и вертикальной (S_x) плоскостях должно определяться спектральной ширпной Δλ падающего на образец пзлучения, нерегулярностью структуры исследуемого образца ∆d и эффективным размером источника излучения, т. е. размером поперечного сечения пучка электронов в месте излучения 2σ., 2σ. в соответствующих плоскостях [15, 17]:

$$\begin{split} S_x^{-1} &= \sqrt{\left(\frac{\Delta\lambda}{d}\right)^2 + \left(\frac{\lambda}{d^2}\Delta d\right)^2 + \left(\frac{2\sigma_x}{L}\right)^2};\\ S_x^{-1} &= \sqrt{\left(\frac{\Delta\lambda}{d}\right)^2 + \left(\frac{\lambda}{d^2}\Delta d\right)^2 + \left(\frac{2\sigma_x}{L}\right)^2}. \end{split}$$

Последнее слагаемое (L — длипа канала) появляется из-за того, что входная днафрагма работает как обычшая камера обскура, передавая взображение пучка электропов па дстектор. Разрешение в горизонтальной плоскости обычно хуже, так как горизоптальный размер пучка электропов обычно в 10 раз больше вертикального. Для улучшения горизонтального разрешения существует несколько градиционных методов.

 Увеличение длины канала СИ п уменьшение вклада горизонтального размера в разрешение. Это очень певыгодное решение, так как плотность потока фотонов па образце синжается по квадратичной зависимости от длины канала СИ.

2. Установка коллиматора и ограничение угловой расходимости пучка СИ, падающего па образея, до величины Δ0 ~ 10⁻⁴. Напболее оптимальным решением яяляется установка отдельной диафрагмы в непосредствешной близости от места излучения, так как в этом случае илотность фотонов падает пе по квалратичному закопу, как в случае удлицения канала, а линейно.

3. Перестройка магнитной фокуспрующей системы накопителя с использованием режима «малой β-функцини» так, чтобы сжать в месте вазучения радиальный размер пучиа до нертикального. В этом случае улучшение разрешения не сопровождается уменьшением плотности потока фотоцов на образец. Это самое оптимальное решения.

4. Повышение относительной интепсивности излучения с одной из длян воля можно осуществить с помощью фокуспрующих монохроматоров. Спектральная ширина падающего па образец излучения определяется угловой расходимостью монохроматвандованного пучка СИ в плоскости электронной орбиты и ширивой дифракционной картины кристальамонохроматора б₀, и связана с дисперсионной формулой соотношением ΔΛ = λ сtg δδ6 с угловой расходимостью дифрагированието на монохроматора пучка б. Последняя может быть оденена ю формуле

$$\delta\theta = \sqrt{\delta\theta_x^2 + \delta\theta_M^2}.$$

При расположении диафрагмы ширпной S1 на внешнем копце выводного канала СИ угловая расходимость падающего на кри- $S_1 + 2\sigma_x$ сталл-монохроматор излучения составляет δθ = -Поэтому в реальных условиях эксперимента днафрагмы ширпной 10 мм обеспечивают угловую расходимость $\delta \theta_r = 1 \cdot 10^{-3}$ рад. Кристаллы-монохроматоры, такие как кремний, германий, кварц, имеют полуширану дифракционной картины порядка цесколь-ких угловых секунд, а $\delta\theta_{\rm s}\sim 5\cdot 10^{-5}$ рад « $\delta\theta_{\rm s}$. Поэтому дифракционная картина монохроматора совершенного кристалла практически не влияет на спектральную ширину дифрагировавшего на нем СИ и, следовательно, на разрешающую способность рентгенооптической схемы. Для обычно используемых отражений указанных кристаллов — (1011) кварца и (111) кремния при настройке на длину волны $\lambda = 1.5$ Å, а $\Delta \lambda = 5 \cdot 10^{-3}$ Å. Такая величина $\Delta\lambda$ при изучении структур с d > 50 Å дает угловое разрешение <10⁻⁴ рад, что вполие достаточно для большей части малоугловых экспериментов с биологическими объектами. При структурпых исследованиях в области средних и больших углов дифранции часто допустимо угловое разрешение порядка нескольких десятков угловых мипут. В этом случае значительный выигрыш в светосняе может быть получен при использовании коллимационной системы, обеспечивающей такого же порядка угловую расходимость пучка СИ и кристаллов-монохроматоров с большой шириной дифракционной клартим (таких как шилифованный кварц и даже широлитический графит).

2.4. ВЫБОР ОПТИМАЛЬНЫХ РЕНТГЕНООПТИЧЕСКИХ СХЕМ, ПРЕОБРАЗОВАНИЕ ПУЧКА СИ ИЗОГНУТЫМ КРИСТАЛЛОМ В ГОРИЗОНТАЛЬНОЙ ПЛОСКОСТИ

В основе метода выбора оптинальных схем монохроматизации лежат теоретические выражения, описывающие пространственно-энергетическое преобразование пучков полихроматического рентгеновского излучения пирокого спектрального состава в кристаля-дифракционных рентгенооптических схемах [18-20]. В этих выражениях учитываются особеплости дифракционного отражения на реальном кристалю, обладающем более или менее развитой субструктурой.

Разложение энерготических характеристик цучка СИ и передаточной функцип кристалла-монохроматора на незаписимые составллющие в горизонтальной и вертикальной плоскостях позволяет независимо рассматривать преобразование цучка в горизонтальном и вертикальном сечениях рентеноонтической схемы. Преобразование цучка СИ в горизонтальной плоскости осущесть ляется кристаллом-монохроматором, в вертикальной — зеркалом полного внешнего отражения. Выведенные формулы для оценки иотока, средпеквадратического отклонения, полуширины и максимальной освещенности в пучке дифрагировапного излучения учитывают геометрию схемы п рентгенооптические свойства кристаля.-дифракционного диспертирующего замемента.

Получённые выражения для преобразования паракснального полихроматического пучка ренттеповского налучения применимы к разлятичны вариантам схемы монохроматизации сипхротронного излучения как с изогнутыми, так и с плоскими кристаллами-монохроматорами на прохождение и отражение. Во всех вариантах монохроматизации в любом сеченин дифрагированного пучка соз дается астигматическое изображение сечения первичного пучка. Сопряженные сечения связаны условиями фокусировки. При монохроматизации сипхротронного излучения, миеющего ипрокяй спектральный состав, сопряженные сечения в общем случае пе лежат на окружности круга Роуланда и находятся на ней лишь в чаством случае мовохроматической фокуспровки, в отличие от фокуспрующих схем пэлучения рентгеновской трубки, где источник и фокус обязательно должны располагаться на окружиюсти круга Роуланда. Кривизна и асимметрия кристалла определяют геометрическую шприну сечения дифрагированного пучка и горизоптальной плоскости и не влияют на распределение освещенности в вертикальной плоскости.

Критернем применимости полученных выражений является малая шприна распределения спектральной плотности потока дифрагированного излучения по сравнению со спектральной шириной источника.

Существуют два варпанта схемы фонуспровки сипхротронного излучения кристаллом-монохроматором: 1) с использованием в качестве источника излучения сечения электронной орбиты и 2) с примецением в качестве источника излучения щелевой диафратмы, установленией между электронной орбитой и кристаллом-мопохроматором. Первый варпант может быть реализован всегда и использучется практически на всех источниках спихротроньюго излучения. При значительном расстоящии от электронной орбиты до монохроматора может быть применен только цервый вариант фокусировки. Второй варпант применим для источников с малым расстоянием орбита электронов — монохроматор, но он ограничен из-за трудностей установки щелевой диафрагмы вблизи электронной орбиты.

При оптимальной схеме монохроматизации поток дифрагированного излучения пропорционален квадрату угловой разрешающей способности схемы, а освещенность в максимуние прямо пропорциональна угловому разрешению схемы и обратно пропорциональна расстоянию от кристалла-монохроматора до плоскости регистрации.

Экспериментальная проверка расчетных оценок п измереппых параметров дифрагированного пучка СИ при различных вариантах геометрии схемы п кристаллов-монохроматоров показала хорошее их согласие. Это позволяет применять полученные формулы в практических расчетах.

2.5. ФОКУСИРОВКА ПУЧКА СИ В ВЕРТИКАЛЬНОЙ ПЛОСКОСТИ ЗЕРКАЛОМ ПОЛНОГО ВНЕШНЕГО ОТРАЖЕНИЯ

Для улучшения нараметров монохроматизярованного пучка в вертикальной плоскости — углового разрешения и освещенностя в маковмуме — в реятгенооптическую схему вводится зеркало полного отражения. Явление полного ввешнего отражения и применение зеркал для фокусировки рентгеновского взлучения описаны в работах [24]—23]. В рентгенооптических схемах с высоким угловым разрешением (~10⁻⁵ рад) используются совершенные кристаллы, не оказывающие влияния на разрешение, а кривпзия и асимметрия кристалла, в свою очередь, не влиянот на распределение освещенности в вертикальной плоскости. В принятой пами схеме монохроматизации зеркало полного внешнего отражения установлено позади мопохроматора, фокусирующего цучок СИ в горизонтальной плоскости. Поэтому разрешение и распределение освещенности в максимуме по вертикали будут определяться только фокусирующим зеркалом.

При отражении рентгеновских лучей зеркалом полного впешнего отражения возникают геометрические аберрации - сферическая и кома, искажающие изображение источника. Величина сферической абсррации с высокой степенью точности оценивается выпажением $S = 3L^2 M'_r/2\rho$ [22]. В этом выражении L — половина длины отражающей поверхности зеркала; М'т — коэффициент увеличения; о — рациус изгиба зеркала. При изгибе зеркала по эллиптической кривой сферические аберрации отсутствуют [21]. Наиболее существенной аберрацией является кома, возпикающая вследствие того, что различные участки зеркала дают разные увеличения. Кома возрастает с размером зеркала п не может быть откорректировапа изменением формы кривой отражающей поверхности [24]. При малой величине угловой апертуры (3.4 · 10⁻⁴ рад для ВЭПП-З и 5,4 · 10⁻⁵ рад для ВЭПП-4) оценка углового разрешения рептгепсоптической схемы в вертикальной плоскости проводится без учета геометрических аберраций, поскольку всличины комы и сферической аберрации незначительны. Так. для напыленного никелем зеркала длиной 150 мм, устаповлепного на накопителях ВЭПП-3 и ВЭПП-4 при $\lambda = 1.5$ Å, величина сферической аберрации составляет 2 · 10⁻² и 2 · 10⁻³ мм соответственно. Это на порядок меньше размера изображения источника в вертикальной плоскости.

К начеству отражающей поверхности зернала предъявляются очень высокие требования, так как поверхностные дефекты (даранины, волнистость п другие неровности) увелячивают рассеяние репятеновских лучей и синжают отражательную сиссобность зернала [22]. Цучок, отраженный высококачественной поверхностью, достаточно равномерен, но ширина распределения освещенности фокусного пятна оказывается больше ширины, задаваемой геометрией схемы [21].

Угловое разрешение схемы в вертикальной плоскости складывается из разрешения, обусловленного геометрией схемы, и разрешения, определяемого качеством поверхности зеркала [25].

Наплучшее разрешение рентгенооптической схемы в вертикалыной плоскоги достигается при размещении образца непосредственно за зеркалом, но при этом ухудшается малоутловое разрешение из-за высокого уровня фона вблизи ловушки первичного пучка. Поэтому для увеличения малоуглового разрешения фоновая щель, устанавливаемая непосредственно перед образацом, должпа размещаться от зеркала на расстоянии, обеспечивающем минимум фона вблизи ловушки.

Для увеличения светосилы камеры пеобходимо использовать максимально возможный размер пучка по вертиналл. Малая велячина угла полного внешнего отражения пучка СИ приводат к довольно большим размерам фокуспрующих поверхностсй зеркал. На расстоянии нескольких метров от орбаты пучко СИ равен цескольким миллинетрам. Оптимальный размер фокуспрующего зеркала может достигать 1 м. Такая камера построена па СПИАР в 1976 г. (США) [26, 27]. Однако создание указанных оптических эмементов сяязано с серьевными технологическими трупостлями.

Можно идти по пути установления нескольких зеркал. Так, па ДЕЗИ в 1978 г. (ФРГ) были попытки использовать восемь зеркая [28]. Юстировка их трудоемка и реализуется только с помощью ЭВМ.

На Фотонной фабрике (г. Тсукуба, Япония) разработана малоупловая камера с зеркалом из семи сегментов по 200 мм длиной каждый [29] и греугольтыки мопохроматором высотой 170 мм. Камера располагается на расстояния от орбиты возникает вопрос и об увеличении размера кристалла, фокусирующего поток в горязонтальной плоскости. В нашем случае на накопителе ВЭПП-3 экспериментальные установки расположены в непосредственной близости к иольцу накопителя (2,5 м). Вертикальный размер пучка СИ на выходе капала равен 1,5 мм, так что длина зеркала порядка 150 мм оказывается достаточной [30], чтобы перехватить весь пучок. Но в экспериментах, которые будут проводиться в специальном бункере, удаленном от кольца на 10 м, увеличение длины фокуспрующих поверхностей станет необходямым.

2.6. УЧЕТ ПОЛЯРИЗАЦИИ СИ ПРИ ВЫБОРЕ ОПТИМАЛЬНОЙ ГЕОМЕТРИИ ЭКСПЕРИМЕНТА

Как известно, СИ обладает высокой степенью поляризации. Это обстоятельство обязывает экспериментатора при выборе определенной геомстрии съемки оценить разницу в интенсиявностях при различных положениях оси монохроматора. Возможны два положения последней относительно плоскости орбиты — параллельное и периендникулярие. При параллельном положении оси интенсивность отраженного пучка (I_{4}) максимальна, однако такое положение трудно осуществить конструктивно. При периендикуляриом положении ося, которое легче осуществить, интенсивность отраженного пучка (I_{\perp}) несколько меньше. Разница в интенсивностях невеляка. Расчет показывает, что для кварда (плоскость 10 $\overline{11}$) отношение I_{\perp}/I_{\parallel} меняется незазачительно (от 0,98 до 0,70 в интервале длин воли от 0,7 до 2,5 $\overline{\Lambda}$) [7].

Незпачительная потеря интенсивности при перпендикулярном положения оси монохроматора компенсируется конструктивными и техпологическими удобствами. Перпендикулярное положение оси позволиет располагать экспериментальную установку в горизоптальной плоскости. Это дает возможность использовать камеры с большим расстоянием между образцом и плоскостью наблюдения, облегчаст юстировку и настройку на любую длину волны. Прп паразлельном расположении оси монохроматора отраженный луч направлен под углом к горизонту, что приводит к неоправданному усложнению всего комплекса аппаратуры, а также к трудпостям в юстировке п эксплуатации.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Гинье А. Рентгенография крпсталлов.- М.: Физматиз. 1961.- 604 с.
- 2. Хейкер Д. М., Зевин Л. С. Рептгеновская дифрактометрия.- М.: Физматглэ, 1963.— 380 с.
- 3. Владимирский Ю. Б., Коган М. Т. // Аппаратура п методы рентгеновско-го анализа.— 1974.— Вып. 13.— С. 74—86.
- 4. Владимирский Ю. Б., Коган М. Т. // Там же.— 1975.— Вып. 17.— С. 3-8.
- Пинскер З. Г. Дипамическое расселите рентгеновских лучей в пдеаль-ных кристаллах. М.: Наука, 1974. 320 с.
- 6. Джейме Р. Онтические принципы дифракции рептгеновских лучей.-
- М.: ИЛ. 1950.—572 с.
 Вазина А. А., Герасимов В. С., Железная Л. А. и др. // Бнофизика.— 1975.—Т. 20. № 5.— С. 801-806.
 Влохин М. А. Физика рентгеновских лучей.— М.: Физматгиз, 1957.—
- 518 c.
- 9. Мокульская Т. Д., Мокульский М. А., Никитин А. А. и др. // Докл. АН СССР.— 1974.— Т. 218, № 4.— С. 824—827.
- 10. Holmes K. C. // Endeavour.- 1974.- V. 33.- P. 60-68.
- 11. Barrington Leight J., Rosenbaum G. / J. Appl. Cryst .- 1974 .- V. 7 .-P. 117-121.

- Webb N. G. // Rev. Sci. Instr. 1976. V. 47. P. 545 547.
 Witz J. // Acta Cryst. Soct. A. 1969. V. 25. P. 30-42.
 Witz J. A., Fournet G. Small angle scattering of X-ray. N. Y.: J. Willey, 1955.- 350 p.
- Вазина А. А., Герасимов В. С., Железиал Л. А. п др. // Аппаратура в методы репттеповского апализа. 1978. Вып. 19. С. 73—81.
- томотрпя в рептеповском излучении структуры и динамики структур-ных превращений биополимеров. Пущино, 1978. 18 с.
- 18. Вазина А. А., Владимирский Ю. Б., Герасимов В. С. п др. Крпсталл-дифракционные рентгенсоптические схемы монохроматизации синхротронного пзлучения.- Новосибирск, 1977.- 48 с.
- 19. Вазина А. А., Герасимов В. С., Коган М. Т. и др. // Аппаратура и методы рептгеновского анализа. - 1981. - Вып. 26. - С. 3-24.
- 20. Gerasimov V. S., Kogan M. T., Sheromov M. A., Vazina A. A. // Nucl. Instr. Meth.- 1983.- V. 208.- P. 479-487.
- 21. Hendrix J., Koch M. H. J., Bordas J. // J. Appl. Cryst.- 1979.- V. 12.-P. 467-472.
- Franks A. // Sci. Prog. Oxf. 1977. V. 64. P. 371-422.
- 23. Kirkpatrick P. // Nature.- 1950.- V. 166.- P. 251-253.

- 24. Киркпатрик П., Патти Г. // Рептгецовские лучи.— М.: Изд-во иностр. лит., 1960.— С. 377-414.
- 25. Haselgrove J. C., Faruqi A. R., Huxley H. E., Arndt U. W. // J. Phys. E. 1977. V. 10. P. 1035-1044.
- 26, Webb N. G., Samson S., Stroud R. M. et al. / J. Appl. Cryst.- 1977.-V. 10.- P. 104-110.

- V. 10.— Р. 104—110.
 27. Webb N. G., Samson S., Stroud R. M. et al. // Rev. Sci. Instr.— 1976.— V. 47.— Р. 936—839.
 28. Bordas J., Koch M. H. J., Clout P. N. et al. // J. Phys. E: Sci. Instr.— 1980.— V. 13.— Р. 938—944.
 29. Ameniya Y., Wakabayashi K., Hamanaka T. et al. // Nucl. Instr. Meth.— 1983.— V. 208.— Р. 471—477.
 30. Салельев В. Б., Сергиенко П. М., Вазина А. А. и др. // ПТЭ.— 1981.— N 4.— C. 213—216.

Глава З

КООРЛИНАТНЫЕ ЛЕТЕКТОРЫ РЕНТГЕНОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Рентгеноструктурные исследования связаны с большим объемом получаемой информации и, как правило, требуют много времени пля их провеления. В связи с этим естественно желание автоматизировать такие эксперименты, особенно когда последние ведутся на синхротронных пучках. Координатные детекторы рештгеновского излучения, основанные на использовании многопроволочных пропорциональных камер (МПК), позволяют успешно решить эту задачу. В литературе имеется большое число работ, посвященных таким детекторам для дифракционных исследований. Здесь мы ограничимся в основном описанием детекторов. разработапных в Институте ядерной физики СО АН и используемых как в лабораториях института в рептгеноструктурных исслепованиях на пучках синхротронного излучения, так и в пругих организациях. Приведем также для сравнения характеристики петекторов, разработанных в лабораториях СССР и за рубежом.

Первые пифракционные исследования с помошью МПК были выполнены группой Н. Ксуунга в Калифорнийском университете [1]. В этом эксперименте двухкоордипатная пропорциональная камера имела размеры 30 × 30 см², пространственное разре-шение 2 × 2 мм² и разрешающее время 3 мкс. Оригинальный по замыслу детектор для подобных исследований был разработан группой Г. Шарпака [2]. В нем над обычной пропорциональной камерой создавался конический дрейфовый объем со сферическим электрическим полем. Последнее позволило с помощью МПК измерять с высокой точностью углы рассеяния рентгеновских кван-тов в интервале от 0 до 45°, иметь эффективность близкую к 100 %, пространственное разрешение ~0.7 мм по двум координатам и время вычисления координат 5 мкс. Впоследствии это время было значительно сокращено. Одна из моделей описанного детектора уже в течение многих лет успешно используется для рентгеноструктурных исследований группой Р. Фурма [3]. Целая серия однокоординатных детекторов различных конструкций была создана рядом авторов [4-6].

Несколько моделей одно- и двухкоординатых детекторов разработаны в ИЯФ в 1974-1978 гг. [7]. Опыт, накопленный при работе с этими детекторами, а также появление микроВВМ позволили в течение следующих илти лет разработать новые детекторы рентгеновского излучения. Основное их отличие от предыдущих приборов состояло в повышение быстродействия, использовании для части блоков стандарта КАМАК и включении в состав детекторов ЭВМ ЭЛЕКТРОНИКА-60. Все перечисленное позволило существенно распирить функциональные возможности детекторов и сделать их более удобными в эксплуатации.

Первый из этой серии однокоординатый детектор ОД-1 [8], предпазначенный для дибракционных структурных исследований в биологии, кристальографии и физике теврдого тела, пися пространственное распирение окодо 0,2 мм (полная пирина на половине высоты) и быстродействие 150 кЛц (скорость счета полезных собитий при просчетах 50 %).

С целью увеличения быстродействия был разработан детектор ОД-2 [9]. Дстектор включает в себя пропорциональную камеру, электроннку регистрации и ЭВМ ЭЛЕКТРОНИКА-60 с соответствующими блоками управления п вывода пиформации. Рептгеповское излучение регистрируется пропорциональной камерой, катодом которой служит линия запержки. Конструкция пропорциональной камеры показана па рис. 3.1. Входное окцо изготовлено из бериллиевой фольги толщиной 0,3 мм. Анодпые нити днаметром 20 мкм расположены над распределенной плоской линией задержки. Погопная задержка распространения слгнала в линии равна 4.3 нс/мм. Расстояние анод - катод составляет 4 мм. Рабочни объем камеры заполнен смесью 80 % Хе + 20 % СО2. Для уменьшения зависимости амплитуды импульсов от загрузки анодная плоскость содержит 11 иптей. При поглощении рентгеновского кванта в рабочем объеме камеры электроны первичной понизации дрейфуют в направлении апода и в сильном поле вблизи апода образуют лавныу. При движении в электрическом поле электронов и нонов на анодную проволочку, вблизи которой образовалась лавниа, наводится отрицательный заряд, а на все окружающие ес электроды - положительный. Импульс, наведенный на линию задержки, распростраияется к ее концам. Коорлината зарегистрированного кванта определяется измерением разности времени прихода импульсов к концам линии задержки.

Блок-схома электропнии регистрации показана на рис. 3.2. Предварительные усилители смонтированы на корпусе камеры, последующее усиление и формирование сигналов с делью оптимизации пространотвенного разрешения осуществляется усилителяли, которые располагаются в электропной стойке. С выходов усилителей сигналы поступают на дискриминаторы со следящим порогом, формирующие имиульсы СТАРТ и СТОИ для времяцифрового преобразователя (ВЦП). Информация о координате зарегистрированного кванта записывается в упиверсальное запоминающее устройство, выполненное в стандарте КАМАК.







Рис. 3.2. Блок-схема однокоординатного детектора ОД-2.

Блок числа каналов увеличивает пирину канала и позволяет уплотнять запись, что важно при исследовании дивамики процессов при конечном объеме памяти. Сумматор используется для преобразования выходного кода ВЦП в доолчный код, пропорциональный измеряемому интервалу. Отбор событий по энергии осуществляется дифференциальным дискримпиатором, подключенным к анодицому каналу детектора.

Пля получения высокого быстропействия детектора разработан ВШП прямого счета с фазовой нитерполяцией периода тактовой частоты 200 МГц [10]. Ширина канала ВЦП 0.6 нс. Кроме того. в блоке ВЦП применена «схема знака», позволяющая проводить измерения без дополнительной задержки спгнала СТОП п, следовательно, дополнительно увеличить быстродействие детектора. Возникающая при этом неоднородность ширипы каналов в цептре шкалы существенно уменьшается специальной схемой усреднения. Для спижения просчетов, вызванных конечным временем обмена с памятью, на входе сумматора используется разравниватель на три слова. Разработанная электроника позволяет иметь максимальное быстродействие - 600 кГц (скорость обмена с пикрементной памятью [11]). Однако время распространения сигнала по всей плине линии залержки камеры - 500 пс - наклазывает ограничения на допустный временной питервал между событиямп. Если время между событиями меньше 500 нс, то возможны случал, когда СТАРТ приходит от одного события, а СТОП - от другого. В детекторе ОД-2 для исключения таких событий используется блок отбора [10], который бракует все событля, пптервал времени между которыми меньше 500 пс. Так как блок отбора имеет разрешающее время, равное 30 нс, то «одповремецные события», временной интервал между которыми меньше 30 нс, этим блоком не бракуются. Для исключения таких событий дополнительно проводится проверка временного инварианта (анод - старт) + (апод - стоп). Применение отбора по такой сумме при входной загрузке 550 кГц в 20 раз уменьшило число регистрируемых «одновременных» событий и соответственно расширило диапазон измеряемых интенсивностей.

В детекторе ОД-2 с целью предохранения пропорциональной камеры от искрового пробоя и возможного перегорания анодных проволочек при неправильной эксплуатации включен блок защиты, который спимает анодное напряжение в момент перехода пропорциональной камеры в гейгеровский режим. Защита срабатывает, если в течение 10 мс появляется пе менее 4 импульсов с амплятудой, в 10 раз превышающей рабочую амплитуду.

Управление цетектором осуществилется с помощью алфавитно-пафрового дисилея МЕРА. В качестве запомпнающего устройства большой емкости используются накопители на гибких мативитимх дисках, на которых размыщаются операционная система РТ-11 ([10], гл. 4) и рабочше программы. Результаты измерений могут быть также записаны на диски. Вывод информации осуществляется с помощью цветного грабического дисплея и начатающего устройства. Для управления экспериментальной установкой и изморения сигналов от различных датчиков детектор содержит релейный регисто на 24 канала и блок зарядово-пифровых преобразователей на 4 канала.



Рис. 3.3. Зависимость скорости счета полезных событий детектором ОД-2 от входной загрузки.

Характеристики детектора ОД-2, измеренные с помощью изотопа ⁵⁵Fe и рентгеповской установки УРС-002, приведены ниже.

Входное окно	100×10 мм ²
Диапазон энергий	3÷20 кэВ
Эффективность регистрации	70 % для эцергиц 8 кэВ
Пространственное разрешение	
(ПШПВ)	0,2 мм (8 кэВ)
Ширина канала	70 MKM
Интегральная пелинейность	0,2 %
Среднеквадратичная величина диффе-	
ренциальной нелинейности	1.5 %
Быстродействие	300 кГц (50 % просчетов)

На рис. 3.3 приведена зависнмость скорости счета полозных событий от входной загрузки.

Высокое пространственное разрешение и быстродействие позволяют успешно использовать детектор ОД-2 не только для широкого класса дифракционных реятгеноструктурых исследований, но и для изучения динамики структурных изменений («дифракционное кипо») и измерений на сипхронных пучках. При всследования динамики структуры объекта в режние «кино» может быть силто 20 кадров при числе каналов 1024. При умевышения числа каналов в 2 и 4 раза соответственно увеличиваются ширина канала и число кадров. Изменение числа каналов осуществляется через ЭВМ. Мянимальная экспозиция кадра в режиме кипо 1 мс.

Двухкоординатный детектор ДЕД-З (128 × 128 каналов) также предназначев для репттевоструктурных исследований [12]. Метод съема информации выбрап таким, чтобы получить макошмальное быстродействие установки. Блок-схема детектора представлева на рис. З.4. Излучевне регистрируется с помощью миютопроволочной пропоридиолальной камеры. Анодная плоскость камеры выполнена из проволоки днаметром 20 мкм с шагом 2 мм. Все анодные проволочки соедпнены вместе. Информацля синмается с двух катодных плоскостей, проволочки которых направлены взаимно ортогонально. Плоскости намотаны проволокой днаметром 60 мкм с шагом 1 мм. Расстояние между анодной и катодными поскостями 4 мм. К каждой паре катодных проволочек



подключен усилитель-формирователь (УФ). Импульсы с усилителей-формирователей поступают в приемные регистры процессора. При регистрации кванта величина положительного сигнала, наведенного на катодные проволочки, зависит от расстояния до лавины. Поэтому в катодных плоскостях срабатывают группы трактов, соединенных с проволочками, расположенными вбляза места образонания лавипы. Обе координаты кванта определяются быстрым цифровым процессором как центр группы сработавлих трактов, сля обеспечения хорошей одпородности зффективной площади каналов детектора при таком методе вычисления координат ноглощенного кванта необходима весьма точвая настройка порогов срабатывания усилителей-бормирователей.

Процесс обработки пиформации разбит на пять последовательпых стадий, каждая па которых занимает не более 60 нс. При таком «конвейерном» способе определения координаты зффективное мертвое время также составляет 60 нс. На первой стадии в приемном регистре фиксируется позиционный код катодных тракпов, сработавниях при регистрации кванта (в течение 50 пс после первого сработавлися три регистрации кванта (в течение 50 пс после первого сработавлися три регистрации кванта (в течение 50 пс после первого сработавлися уче уче и процеходят выделение краев группы сработавлиих трактов и инфрация этих крайних УФ. На третьей стадии вычисляется коордипата события как полусумма номеров крайных сработавлилих трактов, а также определяется число сработавних уФ в группе по каждой координате. На четвертой стадии вычисляется полная сумма сработавших трактов по обеми координатате. На пятой стадии происходит отбор событый по знертии при помощи пифоросор адекроиминатора.

Помимо вычисления координат точки поглощения кванта процессор выделяет так называемые «бракованные» события, не удовлетворяюще критериям отбора. К ним отпосятся: события, Рис. 3.5. Зависимость ширипы наведенного заряда от энергии, выделенпой в камере.

S = суммарляя шпрша по двум координатам, равняя полному числу сработавлицу гонлится сія дискримина торов, Горисонталької лициба позаява шполива пидля событий с данной величиної S. Амплитуда пахорилась на влодной плоскости, поправки на келинейную завистность змялитутам от энергин не влості-



которые зарегистрированы только в одпой катодиой плоскости (отсутствует вторая координата); двойные события — регистрация двух и более квантов в интервале разрешающего времени (в двухкоординатных детекторах без привлечения какой-инбудь дополнительной информации нельзя определить координаты двух квантов, поглощенных в камере в интервале разрешающего времени); события, у которых энергия, выделениая в камерс, выходит за установленный интервал значений; события, не заречистрированные пз-за «кертвого» времени памяти. Число событий каждого вида «брака» регистрируется. Эти данные используются для оценки правильности работы камеры и электроники, контроля за соблюдевшем условий эксперимента.

Некоторых пояснений требует брак по энергия. В детскторе ДЕД-З вследствле его высокого быстродействия пельзя процести отбор событий по энергии с помощью амплитудиого дискриминатора. Вместе с тем с ростом энергии увеличивается «ширина» заряда, паведенного на катодные плоскости. Если количествению измерять шириву наведенного заряда в каждой плоскости чис.том усилителей-дискриминаторов, сработавших при регистрации данного кванта, то можно использовать этот параметр для дискримянации по знергии. Так как число сработавших усилителей-дискрим



минаторов определлется процессором на одном из этапов вычисления координаты, то такая дискриминация по ширипе наведенного заряда не требует дополнительного времени. Завясимость ширипы наведенного заряда от энергии и эффективность цифровой дискриминации по энергии приведены на рис. 3.5 и 3.6. Отбраковка событий по энергии может быть выключена операторм.

> Рис. 3.6. Распределение событий по энергии, получение при облучения камеры тормозным рентгеновским излучением со средней энергией 45 кэВ.

> Пунктиром показано распределение, полученное при отборе событий с S = 12.

Для реализации высокого быстродействия, обеспечиваемого цифровым методом съема информации и конвейерным апгоритмом се обработки, запись данных о событиях производится поочередно в шесть блоков инкрементной памяти, какдый из которых способен регистрировать 0,6 МГц [11]. Таким образом, общее быстродействие намяти составляет 3,6 МГц, при этом происходит разразинталие информации. Емкость каждого блока памяти 16 К, емкость ячейки. 2¹⁶ событий. ЭВМ может выключать любой блок, например, при его пенсправности пыл отсутствии. При съемке «кишо» информация некоторое время регистрируется одпим блоком памяти, затем другим и т. д. Для уменьшения просчетов при съемко «кипо» между процессором и памятью включен разравпиватов.

Управление детектором осуществляется с помощью ЭВМ Электроника-60. После окончания каждого измерения информация о распределении интенсивности по поверхности камеры переписывается в оперативную память ЭВМ. После пеобходимой обработки информация может быть выведена на цветлой дисплей [13] или цифронечать. Для храпения программ и записи результатов измерсиний используются гибкие диски и связь с центральпой ЭВМ.

Рассмотрим основные характеристики детектора ДЕД-3. Чувствительная поверхность камеры 256×256 мз², число капалов 16384. Площадь каждого канала 2×2 мм², среднеквадратичная ошибка изморения коордипаты составляет 0,7 мм. Среднеквадратичная неоднородность оффективной площади ве превышает 3 %, а исоле виссения поправок свижается до 1-2 %. Поправки на веоднородность должны измеряться при равномерном облучении камеры излучением той же звергии, при которой ведется эксперимент. Толинина чувствительного слоя пропорциональной камеры равна 8 мм и при заполнении ксеноцом и углекислым газом (20 %) имеет эффективность 60 % при энергии рентсеновского излучения 8 къЗ

Разрешающее время детектора равно 50 ис. Полное мертвое время детектора, включая разрешающее время, составляет 60 пс. При 50 % просчетов скорость регистрации полезных событий составляет З МГп. Форма каналов детектора ДЕД-З, измерепная в направлении, перпендикулярном аподным проволочкам, приведена па рис. 3.7. Провалы в скорости счета связаны с ослаблением интепсивности за счет верхних катодных проволочек. Форма капалов, измеренная вдоль анодных проволочек, пмеет такой же вид, но на этих кривых отсутствует поглощение, связанное с катодными проволочками, так как они идут вдоль направления сканпрования. На рис. 3.8 приведены кривые, характеризующие быстродействие детектора. Результаты, приведенные на этом рисунке. можно проиллюстрировать следующими оценками. При затрузке камеры n = 6 МГп и мертвом времени системы регистрации T = 60 нс число срабатываний детектора получается из соотношения: N = n/(1 + nT) = 4.4 МГц. Сюда входят как полезные



Рис. 3.7. Зависимости скорости счета в трех соседних капалах от смещения коллимированного пучка. Ширина щели 0,2 мм.



Рис. 3.8. Зависимость скорости счета детектора от загрузки камеры.

І — полозные события; 2 — брак двойных событий; 3 — события, зарегистрированные только по одной координате; 4 — сумма событий 1—3.

события, для которых определены обе координаты, так п брак двойных событий и события, при которых сработала только одна катодная плоскость. Из рис. 8 следует, что экспериментальные аначения этих величии соответственно равны 3,0; 0,85 м 0,45 М Гц. Их сумма — 4,3 М.Гц — хорошо согласуется с оценкой, полученной выше, что подтверждает правильность определения полного мертвого времени детектора ДЕД-3.

Детектор ДЕД-4 был разработан для дифракционных исследований, где не требуется высокого быстродействия. Он имеет такие же, как ДЕД-3, характеристики, но максимальное быстродействие этой модели составляет 1,5 МГц при просчетах 50 %.

Большое число детекторов рентгеновского излучения было разработано группой Ю. В. Заневского в Дубне. В числе других этой группой разработацы двухкоординатные детекторы для рентгеноструктурных исследований, для использования в качестве гаммакамеры, для радиографических измерений с помощью как заряженных частиц, так и нейтропов и т. д. Основным отличием двухкоординатных детекторов этой группы от детекторов, разработанных в ИЯФ, является метод съема информации. Группа Ю. В. Заневского для съема информации использует пве распределенные линии задержки, на которые наводится заряд от двух катодных плоскостей со взаимно ортогонально направленными проволочками. Преимущество этого метода состоит в малом числе вводов в корпус камеры и в простоте камерпой электропики. Недостаток метода — большое разрешающее время. Обычно оно несколько превышает полное время линии задержки, с помощью которой снимается информация. При уменьшении постоянного времени линии задержки снижается пространственное разрешение. Параллельный метод съема информации путем вычисления цент-
ра группы сработавших катодных трактов, который используется в двухкоординатных детекторах ИЛФ, позволяет получить предельное быстродействие, по связан с большым числом вводов в камеру п более сложной камерпой электроникой. Очевидно, в зависимости от задачи, решаемой с помощью двухкоординатного детектора, может быть выбран тот или другой метод съема информации.

Автоматизированный рептгеповский детектор АРД-1 [14], разработанный группой Ю. В. Заневского, имел пространотвенное разрешение і \times 1,6 мм², число капалов 350 \times 200 н мертвое время 0,6 мкс. Педостатком детектора являлась большая неоднородность плоцади капалов. После суммирования по четырем кадалам среднеквадратичная неодпородпость составляла 3 %. Этот детектор использовался в Институте кристаллографии АН СССР для исследования монокристаллов белков. В дальнейшем был разработан новый детектор [15] с хорошей однородпостью по всей поверхности камеры (256 \times 200 капалов). Детектор имеет высокую угловую точность, ширину каналов 1,8 и 2 мм по двум координатам, мертвое время 0,6 мкс.

В 1986 г. появилась интересная работа группы японских физиков [16], которые, используя методику, ранее разработанную для медицинской рентгенодиагностики [17], создали детектор с весьма высокими параметрами для дифракциопных исследований, в том числе и на синхротронных пучках. В петекторе используется специальный люминофор. запоминающий рентгеновское изображение. Путем дазерного сканирования и последующей оцифровки сигналов с фотоумножителя, регистрирующего сцпптилляциопное свечение, в памяти ЭВМ получают пифровое изображение распределения рентгеновского излучения по поверхности сциптилляционной пластины с памятью. Детектор имеет весьма высокие параметры: пространственное разрешение 0.2 × 0.2 мм², эффективность около 100 % для энергин 8-17 кэВ и практически любое быстродействие. Недостатком детектора является ограниченная оперативность (облучение и затем считывание), а также высокая стоимость установки, включающей в себя высокоточное механическое устройство пля дазерного сканирования в двух направлениях.

Координатные дстекторы рентгеновского изиучения разработаны во многих лабораториях мира, однако способы определения характериотик таких дстекторов сильво различаются. Это затрудияет как сравнение детекторов разных конструкций между собой, так и правильное планпрование новых рештеноструктурных экспериментов. Поэтому полезно обсудить, как нанболее целесообразно количественно описывать основные свойства коордипатных дстекторов — их пространственные и временные характеристики.

Пространственные характеристики детектора полностью определяет кривая разрешеения канала, измеренная с помощью перемещаемого коллимированного источника (см. рис. 3.7). По этой кривой могут быть определены среднеквадратичная оннибка намерепия координать точки поглощения кванта о п ницрина на полувысоте D. Если крипва разрешения личет вид распределения Гаусса, то D = 2,36б. Для двухкоординатных детекторов в направлепип ортогопальном аподных проволочкам ширица канала определяется шагом аподных проволочкам (пирица канала к прямоугольной п $\Delta \approx D$. Как правило, по другой координате выбирается такая же ширина канала. При этом требусмый объем памяти будет минимальным.

Для однокоординатика детекторов пропорциональная камера позволяет получить вдоль аподных проволочек разрениение D = 0,1 – 0,2 мм. Для практической реализации указанного предельного разрешения необходимо, чтобы Δ было в 3—4 раза меньие D. Рост объема памяти, связанный с таким выбором инприны канала, в этом случае вполяе допустим. При съеме информации с помощью липии задержки Δ определяется инприной канала ВЦП. Если $\Delta \leq D/3$, то для намерения функции разрешения детектора достаточно облучить камеру в произвольной точко узким коллимированным пучком. По этой кривой могут быть найдены венчичны о п D. Если $\Delta \sim D, 1$ мм для определения этих параметров требуется, кроме узкой коллимации, достаточно точное механическое устройство для сканирования.

На наш взгляд, паиболее подходящими величинами для описаиня пространственных характеристик координатных детекторов являются о п Δ. Для примоугольной формы канала σ = 0,29Δ. Превышение о над этой величиной показывает степець размытости пространственных границ капала.

К пространственным характеристикам детектора следует также отнести однородность эффективной площади капалов. При раввомерном облучения поверхности камеры среднеквадратичная относительная неоднородность может быть легко вычислена по пэмеренным значениям числа событий, зарегистрированных в каждом канале детектора. Так, определенная неоднородность учитывает разброс как площади каналов, так и эффективности регистрации (хотя последния величина обычно мало изменляется по поверхиости камеры).

Для получения хорошей точности при измерении положения и интенсивности рефлексов в рентгеноструктурных исследованияях среднеквадратичная неоднородность площади каналов не должна превышать 2—3 %. Виссепие поправок на неоднородность позволяет поъксить точность пэмереций.

К временным характеристикам детектора в первую очередь относятся разрешающее время и быстродействие. Съем информации у большинства детекторов построен так, что если иптервал между регистрацией двух квантов меньше разрешающего времени, то коордиваты этих двух событий определить нельзя и их следует отбросить. Это быстро увеличявает просчеты с ростом интенсивности вляучения. Так, в детекторе ДЕД-3, имеющем разрешающее время 50 пс, при загрузке камеры 6 МГп регистрация полезных событий составляет только З МГц, причем основные потери связаны с отбраковкой событий, при которых в интервале разрешающего времени камера регистрирует пва и большее число квантов. Для детекторов со съемом информации с помощью линии задержки разрешающее время равно длине линии задержки п обычно лежит в пределах 300-500 ис. Это в первую очередь ограннчивает быстродействие таких детекторов. Для детектора с Т., = 500 ис скорость регистрации равна 350 кГц при уровне просчетов 50 %. При этом предполагается, что отсутствуют просчеты, связанные с другный элементами электропики.

Таким образом, разрешающее время является весьма важным параметром, и оно должно приводиться при онисании детектора.

В качестве характеристики быстродействия в разных работах. даны скорости регистрации при уровнях просчета 10, 12, 30 % п т. д. Иногда приводится максимальная скорость счета, хотя она достигается при очень больших просчетах, исключающих проведение экспериментов при таких условиях.

При использовании рентгеновских детекторов в дифракционных исследованиях кажется целесообразным описывать быстродействие детектора скоростью регистраци при уровие просчета 50 %. Эта величина достаточно хорошо характеризует предельное быстродействие, при котором можно вести эксперименты, и побавочная раднационная пагрузка на образец еще невелика. Для большинства рентгеноструктурных экспериментов таким образом определенное быстродействие должно лежать в пределах 0,1-3 МГц.

Детекторы рентгеновского излучения на основе многопроволочных пропоринональных камер являются весьма эффективнымп приборамп для различных задач рептгеноструктурных исследований. Это подтверждается очень большим числом работ, выполненных с их помощью в бнологии, кристаллографии, физике твердого тела н в ряде других исследований. Ожидалось, что более шпрокое применение в этих работах найнут полупроволниковые приборы. Но пока эти прогнозы оправдались не полностью. Несомненно, очень интересным для рентгеноструктурных исследований является новый метод регистрации рентгеновского излучения, основанный на использовании люминофоров с цамятью с последующим лазерным считыванием.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Cork C., Fehr D., Hamlin R. et al. // J. Appl. Cryst. 1973. V. 7. P. 319.
 Charpak G., Demierre C., Kahn R. et al. // Nucl. Instr. Meth. 1977. V. 141. P. 449-455.
- 3. Kahn R., Fourme R., Bosshard R. et al. // Там же.- 1986 .- V. A246 .-Rain R., Fischer J., Ingaki Y. / Nucl. Instr. Meth. 1902. - V. 201. - Bole R., Fischer J., Ingaki Y. / Nucl. Instr. Meth. - 1982. - V. 201. --

- P. 93-115.

- 7. Бару С. Е., Провиз Г. И., Савинов Г. А. и др. // Кристаллография.-
- Bapy C. E. 1960as 1 379.
 Auchenko V. M. Baru S. E., Sidorov V. A. et al. // Nucl. Instr. Meth... 1980. 7. 208.- P. 443-444.
- 1300.- у. 200.- Г. 440-2444. 9. Aulchenko V. M., Feldman I. G., Khabakhpashev A. G. et al. ∥ Nucl. Instr. Meth.- 1398.- У. А261.- Р. 78-81. 10. Аультенно В. М., Савинов Г. А., Усов Ю. В. и др. Комплект блоков КАМАК
- для измерения временных питервалов в координатных детекторах с ливиями задержки.— Препр./ИЯФ СО АН СССР.— Новосибирск, 1986.— 12 c.
- 11. Смирных В. В., Шейнгезихт А. А. Многофункциональное запоминающее устройство в стандарте КАМАК.- Препр./ИЯФ СО АН СССР.- Новосибирск, 1987.— 16 с.
- 12. Baru S. E., Proviz G. I., Savinov G. A. et al. // Nucl. Instr. Meth.- 1983.-V. 208.- P. 445-447.
- 13. Купер Э. А., Пискупов Г. С., Репков В. В. и др. Цветной растровый писилей ЦДР-2.- Препр./ИЯФ СО АН СССР.- Новоспбирск, 1934.-
- 15. Анисимов Ю. С., Заневский Ю. В., Иванов А. Б. п др. Автоматизированный рентгеновский детектор с высокой однородностью пирины капала и улучшенным угловым разрешением для дифракционных эксперимел-
- и улучшенных угловых разрешением для деереалцонных отнорилог гов. Пропр./Объед. Илг. ядерных последовлий. Дубла, 1988. 8 с. 16. Miyabara J., Takahashi K., Amemiya Y. et al. // Nucl. Instr. Meth.— 1986.— V. A246.— P. 572—578. 17. Sonada M., Takano M., Miyabara J. et al. // Radiology.— 1983.— V. 148.—
- P. 833.

Глава 4.

АВТОМАТИЗАЦИЯ ЭКСПЕРИМЕНТОВ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Автоматизация экспериментов на СИ началась почти одновременно с развертыванием исследований СИ в ИЯФ СО АН СССР (1974 г.). В значительной степени этому способствовал весьма высокий уровень автоматизации крупных физических установок, достигнутый в то время в пиституте. Развитые для ускорительных установок прининиы и средства автоматизании в основном удовлетворяли и экспериментам на СИ.

Необходимые средства автоматизации экспериментов включают в себя:

- ЭВМ и периферийное оборудование, обеспечивающее работу с ними:

 электронную аппаратуру для сопряжения ЭВМ с внешними устройствами на экспериментальных станциях;

системное и пользовательское программное обеспечение.

В ИЯФ используются два типа разнородных по архитектуре электронно-вычислительных машин - ЭВМ типа ОПРА и ЭЛЕК-ТРОНИКА. Электронная аппаратура сопряжения компьютеров с внешними устройствами на экспериментальных станциях одинакова в обоих случаях и выполнена в станларте КАМАК.

4.1. ИСПОЛЬЗУЕМЫЕ ЭВМ И ПРОГРАММНОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ

Первые автоматизированные эксперименты, использующие СИ накопителя ВЭШП-3, проводились на ЭВМ типа ОДРА [1, 2]. Значительно позже (1982 г.) автоматизация экспериментов на пучках СИ накопителя ВЭШП-2М пачалась на базе ЭВМ «Электропика». Миотолетний опыт использования таких ЭВМ показая, что оба тиша вполне пригодиы для автоматизации экспериментов на СИ, хотя каждая из этих систем имеет определенные пренмущества и недостатки.

Из-за спльно отличающихся архитектур ЭВМ ОДРА и ЭЛЕКТРОНИКА и соответствующего программного обеспечения принципы автоматизации СИ-экспериментов на этих машинах далее рассмотрены отдельно. Назовем их условно линией ОДР и линией ЭЛЕКТРОНИК.

4.1.1. Линия ОДР

ЭВМ серин ОДРА-1300 (проязводство ПНР) являются функциональными аналогами английских машин серин ICL-1900. Это 24-разрядные машины. Перволачально для автоматизации экспериментов на СИ использовалась ОДРА-1325 — машина 3-то иоколении, имеющая 32 кслов оперативной цамяти и быстролействие 50-80 тыс. операций в секунду. В дальнейшем ОДРА-1325 была заменена на более производительную ОДРА-1305 с оперативной памятью 64 кслов и быстродействие 250-400 тыс. операций в секунду. Машина обслуживала одновременно четыре экспериментальные станции, что приводило к существенным неудобствам и ограничениям в работе.

В 1983 г. в ИЯФ был разработан автономпый крейт-контроллер ОДРЕНОК, программно совместимый с ЭВМ серпи ОДРА, а в следующем году уже шесть ОДРЯТ использовались для автоматизации экспериментов на сипхротронном излучении из накопителя ВЭПП-4.

ОДРЕНОК выполнен в виде 2М КАМАК-модуля, который вставляется на позицию крейт-контроллера [3]. В нем реализована полная система команд ЭВМ серин ОДРА-1300. Оперативная память ОДРЕНКА составляет 32 или 64 К (в зависимости от использованных микросхем) 24-разрядных слов. Его проязводительность на операциях с фиксированной запятой около 300 тыс. операций в секулду, на операциях с плавающей запятой — 0,3—0,5 от проязводительности ОДРЫ-1305. Дополнительно в ОДРЕНКЕ реализована система команд для работы с КАМАК-м. Команда генерации КАМАК-цикла выполвяется за 3 мис, так что максимальная скорость обмена с магнстралью КАМАК в режиме передачи массива составляет 300 тыс. 24-разрядных слов в секулду.

Все ОПРЯТА через систему связи диспетчера подключались к ЭВМ ОДРА-1305, из которой и проводилась их начальная загрузка. Типичная структурная схема крейта ОДРЕНКА изображена на рис. 4.1. Кроме собственно ОДРЕНКА крейт включает в себя ряд интерфейсных и других модулей, что фактически делает такой крейт мпкроЭВМ. Связной модуль позволяет нодключить ОДРЕНОК к ОДРЕ-1305. Для подключения к ОДРЕН-КУ до четырех одновременно работающих терминалов (Т) используется терминальный модуль (интерфейс V24). К этому же модулю может полключаться пифропечатающее устройство (ЦПУ) DZM-180. Модули «Диспетчер связи» (четыре выхода) и «Регистр пиптов» (16 входов) [4] обеспечивают подключение до четырех удаленных крейтов с крейт-контроллерами последовательной связи типа КО601 или СС-24. Автономность работы ОДРЕНКА (после начальной загрузки) достигается установкой модуля электронного диска на 128 К 24-разрядных слов.

Сложившаяся к середине 1985 г. структурная схема автоматизации экспериментов на СИ показана на рис. 4.2. В основном крейты ОДРЯТ (ЕХАFS, элементный анализ, дифракционное кипо) размещались в специальных помещениях — мпни-ВЦ. Непосредственно на экспериментальных станциях в бункере СИ ВЭПП-4 располагались удалевные крейты для обслуживания анпаратуры станций и терминалы, которые соединялись с соответствующими крейтами ОДРЯТ через систему кабельных коммуникаций.

Для обработки данных, отладки программ и аппаратуры в лабораторвых помещениях были организованы дополнительные рабочие места. Аппаратура этих мест подключалась к ОДРЯТАМ, обслуживающим соответствующие эксперпментальные стапции.

Реальное быстродействие каналов связи с удаленными крейтами составляло 0,5—1 мс/слово. Поэтому в экспериментах по мелицинской диагноствие, где гребовался более быстрый обмен данными (100 кслов/с), крейт ОДРЕНКА размещался непосредственно на экспериментальной станции и КАМАК-модули с большим потоком данных устанавливались в этот же крейт.

В качество пакопптеля виформации с длительным хранением к ЭВМ ОДРА-1305 был подключен магнятный барабан (НМБ) DISCMOM DM 0,8 с емкостью 256 К 24-разрядных слов. Кроме того, ОДРА-1305 через архивную ЭВМ имела доступ к центральным цакопителям на магнитных дисках (НМД) ЕС-5052 и к лпвейке накопителей на магнитных лентах (НМД) РТ-3.

Существующая операционная система (ОС) [5, 6] обеспечивала возможность начальной загрузки ОДРЯТ с магнитного барабана и поддерживала одновременную работу всех ОДРЯТ в реальном времени как с их электронными дисками, так и с магнитпым барабаном.

Логическим продолжением липии ОДРА была замена центральной ЭВМ ОДРА-1305 па центральную микроЭВМ ОДРЕ-



Рис. 4.2. Структурная схема автоматизации экспериментов на СИ на ЭВМ типа ОДРА, сложившаяся к середине 1985 г.

НМБ — накопитель на магиитных барабанах; НМЛ — накопитель на магнитных лензах; ТТ, Т — терминалы; ЦД — цветной дисплей; ЦПУ — цифропечатающее устройство.



Рис. 4.3. Существующая структурпая схема автоматизации экспериментов на СИ ОДРЯТА.

НГМД — накопитель на гибких магнитных цисках. Остальные обозначения см. на рис. 4.2.

НОК с подключенным к пему диском большей емкости ВИНЧЕ-СТЕР (27,5 Мбайт) [7]. Модифицированная структурная схема сеги с типичиыми структурными единидами приведена на рис. 4.3.

Через блок «Диспеттер связи» центрального ОДРЕНКА и блоки системы последовательной связи диспеттера [8] подилючается сеть периферийных ОДРЯТ (до 16 штук). Центральный ОДРЕНОК выполвяет функции коммугатора, обеспечивающего начальную загрузку всех ОДРЯТ с магнитного диска и предоставляющего возможность для обмена данными между любым периферийным ОДРЕНКОМ и магнитным диском.

Для обмепа информацией с другими аналогичными центрами предполагается к одпому периферийному ОДРЕНКУ-1 подключить накопители на магнитных лентах типа СМ-5300 и дисководы для гибких магнитных дисков. Разрабатывается также связь центров на ОДРИТАХ с архивом институтского ВЦ. При пеобходимости возможна также постаповка НМЛ СМ-5300 па любой периферийный ОДРЕНОК.

В пастоящее время в ИЯФ успешно действуют несколько систем ОДРЯТ с подобной конфигурацией сети, в том числе и в лаборатории СИ. Ведутся работы по отладке системы более быстрой связи между центральным и периферийным ОДРЯТАМИ и по повышению вычислительной мощности ОДРЯТ.

Специфика использования ЭВМ ОДРА для автоматизации крупных физических установок определила своеобразие и уни-

кальность программного обеспечения. Существующее программное обеспечение полностью разработано в ИЯФ [5, 6]. Осповные цели, преследуемые при разработке этого программного обеспечения, состоят в простоте использования системы, оперативности подготовки и сборки программы, многопрограммпости работы в ЭВМ, позможности работы с большим числом внешних устройств.

Осповы существующего программного обеспечения были заложены в 1975—1976 гг. С тех пор программное обеспечение непрорывно развивалось и совершенствовалось, но оспозные принципы его построения остались неизменными и в настоящее вромя. Условно программное обеспечение можно разделить на несколько компонент:

собственно операциоппая система (ОС);

 — набор программ общего пользования, работающих под операционной систсмой, но которые по своему характеру можно отпести к системным;

библиотеки подпрограмм;

пользовательские программы.

Операциопная система [5, 7] обеспечивает многопрограммную (в настоянцее время до 10 программ) работу ЭВМ с динамическим распределением оперативной памяти между программами. Распределение процессорпого времени между программами осуществляется в соответствии с их приоритетами.

Функцией ОС является организация файловой системы на послгелях информации для хранения программ и данных. ОС поддержнивает взаимодействие между центральной и периферийными ЭВМ и обеспечивает доступ к общим внешним устройствам [НМБ, НМД, НМЛ и т. д.]. Взаимодействие пользователя с ОС осуществляется с помощью набора директив (около 20), задаваемых с терминала (возможно задаше директив и па программы пользователя). К таким директивам отпосятся вывод пиформации о распределении оперативной памяти и состоянии находящихся в памяти программ, загрузка программы с диска в оперативную цамять или ее упичтожение, запуск программы и т. д. Существенно, что объем оперативной каляти, занимаемой ОС во всех ее модификациях, составляет <10 кслов.

К основным программам общего пользования (системным) относятся редактор текстов; транслятор, консолидатор и загрузчик (система компиляции); редактор библиотек; программы работы с дисками и магпитофонами; программа обмена файлами между периферийной и центральной ЭВМ.

Редактор текстов позволяет вводить текст с терминала, выполиять редактирование, записывать текст в файл на электронный диск, магнитный барабан или диск ВИНЧЕСТЕР. Редактирование производится в оперативной памяти ЭВМ и может выполияться либо непосредственно внутри строк, либо на уровне команд редактора.

Для написания пользовательских программ применяется разработанный в ИЯФ язык программирования высокого уровня TRAN [9]. Язык напоминает упрощенный варпант языка ФОРТРАН с возможностями побитовой работы со словами.

Приготовление готовой программы производится апалогично таковому в системе трансляции и компиляции с языка ФОРТРАН [6, 9]. Время трансляции, сборки и загрузки в онеративную память программы размером в ~500 строк на ОДРЕНКЕ пор даботе с эдектронным диском занимает ~15 с.

Редактор библиотек позволяет создавать библиотеки подпрограми, вставлять в библиотеку новые подпрограммы или удалять ненужные, выполять просмотр библиотеки и г. д.

Операционная система поддерживает весьма простую файловую систему. Все файлы, содержащиеся на электронном диске ОДРЕНКА или на магнитном барабапе, общедоступны в разных режимах работы (создание, удаление, запись/чтецие) со всех терминалов, подключенных к даниому ОДРЕНКУ.

В конфигурации сети (см. рпс. 4.3) магнятный диск ВИШЧЕ-СТЕР программно разбивается на пабор директорий с типичными объемами директорий 200—300 кслов. За каждыми периферийным ОДРЕНКОМ закрепляются одна или песколько таких директорий с доступом во всех модах. Не закрепленные за ОДРЕНКОМ директории доступны только в моде чтопия.

Для работы с файлами на электронном диске ОДРЕНКА или на магнитном барабане используется специальная сервисная программа. Программа позволяет выводить информацию о всех имеющихся файлах, создавать, удалять, кошировать файл, долать компрессию носителя и т. п.

Для обмена файлами между электронным диском ОДРЕНКА и матпитным барабаном (см. рис. 4.2) или диском (см. рис. 4.3) существует сервисиая программа, позволяющая проводить как обмен едипичными файлами, так и загрузку электронного диска пабором файлов по заранее заказанному списку.

Запись (чтение) файлов па магнитные лепты выполняется отдельной программой. Возможны режимы запися (чтения) как отдельных файлов, так и всего содержимого барабана пли диска.

Программное обеспечение включает в себя аначительный набор библиотек различных подпрограмм. В языке TRAN не используются ушверсальные и громоздкие форматные операторы ввода/вывода типа ФОРТРАНовских READ/WRITE. Вместо них разработаны пакеты подпрограмм для работы с термипалами (в диалоговом режиме), барабанами и дисками, магнитными лентами, различными внешними устройствами, которые подшиваются к программе только в случае прямого обранения. Написано большое число подпрограмм для работы с КАМАК-аппаратурой, например пакеты для работы с цветным графическим дисилеем, с блоками УШДХ и ИШАК и г. д. Существует ѝ хорошая библиотека научных подпрограмм. Кроме того, каждый пользователь может составляль нужные ему подпрограммы и заводить свою баблиотеки. Болышие возможности, предоставляемые существующим программным обеспечением, высокая оперативность п простота при работе с ним, быстрая обучаемость работе сделали рассматриваемое обеспечение ипроко применляемым в ИЛО.

У описанной выше системы существует ряд педостатков, которые особенно остро проявляются при наличии большого числа пользоватемой па других организаций. К таким недостаткам относятся слабан защищенность файлов, уникальность языка TRAN и т. д.

Конкротные пользовательские программы по обслуживанию экспериментальных станций и обработке дашых составляются п отялакиваются самими пользователямя.

4.1.2. Линия ЭЛЕКТРОНИК

ЭВМ, серин ЭЛЕКТРОНИКА являются функциональными авалогали машин РDР фирмы DEC и представляют собой 16-разрядные машины. Для автоматизации экспериментов ЭЛЕКТРОНИКУ пачали использовать с 1982 г. Сложившаяся к серодние 1985 г. конфигурация ЭВМ показана на рис. 4.4

Как и в системе с ОДРАМИ, пмеется цептральная ЭВМ ЭЛЕКТРОНИКА-100/25, к которой подклютелы четыре магшитимх диска ИЗОТ-1370 по 2,5 Мбайт каждый. Через архивную ЭВМ цептральная машина пмеет достун к накопителям на магнитикх лентах. К центральной ЭВМ радпально через линии последопательной связи подключаются пять эксперпиентальных станций, базпрузощихся на микроЭВМ ЭЛЕКТРОНИКА-60М. Все периферийные устройства (терминая, ЦПУ, крейты п т. д.) на экспериментальных станциях подключаются к ЭЛЕКТРОНИКА-60М. КЕ-60М. Существующие в ИЛФ аппаратура и системное обеспечение предоставляют возможность работы с терминала любой экспериментальной станции как с собственной ЭЛЕКТРОНИК. КОЙ-60М, так и с ЭЛЕКТРОНИКОЙ-100/25 1401.

Стандартно используемая оперативная память ЭЛЕКТРОНИ-КИ-100/25 составляет 108 К 16-разрядных слов, ЭЛЕКТРОНИ КИ-60М — 28 кслов. Быстродействие ЭЛЕКТРОНИКИ-100/25 и ОДРЫ-1305 одного порядка, ЭЛЕКТРОНИКИ-60М — в 3-4 раза меньше. Скорость обмена (программная) по ливням связи составляет около 4 кбайт/с.

Обычный набор аппаратуры большппства эксперимептальных станций включает в себл термпвал, графическое выводное устройство DZM-180 и песколько КАМАК-крейтов. На станции репттевовской микроскоппи и микротомография, где требуется большой объем вычислений при обработке изображений, к ЭЛЕКТРОНИКЕ-60М дополнительно былп подключены специализированный матричный процессор МТ-70 и электронный диск ЭЛЕКТРОНИКА-256К па 256 колов. Матричный процессор име-



Рис. 4.4. Структурная схема автоматизации эксперныентов на СИ ЭЛЕКТ-РОНИКИ.





жение, умножение) составляет ~2 мкс/слово, скорость обмена с памятью ЭЛЕКТРОНИКИ.60М ~2,5 мкс/слово. Такая конфитурацяя аниаратуры существенно уявличивает реальное быстродействие при работе с большими массивами данных и может эффективно использоваться и на других экспериментальных станциях (дифракционное кино, топография и т. д.).

Описанияя конфигурация ЭЛЕКТРОНИК успешно функционируют в пастоящее время, обслуживая эксперименты на накопителе ВЭПП-2М.

Дальнойшее развитие сети ЭЛЕКТРОНИК иланпруется вести по несколько другому принципу (рис. 4.5). В качестве центральной ЭВМ предполагается использовать ЭЛЕКТРОНИКУ-60М, функции которой будут состоять в обеспечения доступа информации на магинтных дисках большой емкости (типа ВИНЧЕС-ТЕР), гибких магинтных дисках и магинтных ленгах из периферийцых ЭВМ к накопителям, а в дальнейшем и к архиву институтского BIL.

Конфитурация аппаратуры па экспериментальных станциях остается без пэменений, но вмест ЭЛЕКТРОНИКИ-60М предподагается применене ЭЛЕКТРОНИКИ-МС-1211. Экспериментальная станция рентгеновской микротомографпп уже работает с такой маншной. По быстродействию ЭЛЕКТРОНИКА-МС-1211 сравнима с ЭЛЕКТРОНИКОЙ-100/25, оперативиая намять мапшпы может быть доведена до 4 Мбайт.

На ЭВМ типа ЭЛЕКТРОНИКА в работах па СИ пспользуются стандартные операционные системы RSX-11. На центральпой ЭВМ ЭЛЕКТРОНИКА-100/25 (см. рис. 4.4) используется операционная система RSX-11М — известная многопользовательская система реального времени. Работа програми в периферийных микроЭВМ ЭЛЕКТРОНИКА-60М до педавнего времени проводилась под более простой ОС RSX-11S. Стандартное системное обсепечение было исколько модифицировано в ИЯФ [10].

Были разработаны средства обмепа между программами в центральной и периферийных ЭВМ, загрузки программ в ЭЛЕК-ТРОНИКУ-60М с дисков центральной ЭВМ, обеспечения доступа к файлам центральной ЭВМ пз программ в периферийных машинах. Была также реализована возможность работы с терминала периферийной машины как ценосредственно с периферийной ЭВМ, так и с центральной ЭЛЕКТРОНИ-КОЙ-100/25.

Модифицированная ОС RSX-11S занимает 10 кслов оперативной памяти, оставляя под программы пользователя 18 кслов, и обеспечивает многопрограммность в периферийных ЭВМ. Имеется также возможность работы программ в ЭЛЕКТРОНИКЕ-60М без операционной системы (stand alone), что позволяет освободить под пользовательские программы дополнительно 10 колов памяти.

В качестве языка высокого уровня для паписания пользовательских программ используется ФОРТРАН-IV. Подготовка, трансляция и сборка программ выполняются в ЭВМ ЭЛЕК-ТРОНИКА-100/25, откуда собранная программа может быть затружева в ЭЛЕКТРОНИКУ-60М. Для работы с терминалом, магнитным диском центральной ЭВМ, КАМАК-аппаратурой написаны пакеты подпрограмм. Имеется и библяютека паучных подпрограмм.

В планпруемой конфигурации сети (см. рис. 4.5) в качестве операционной системы в периферийных ЭВМ ЭЛЕКТРОНИКА-МС-1211 предполгается использовать более простую по сравнению с RSX-11 операционную систему RT-11 или ей аналогичную.

4.2. ПЕРИФЕРИЙНЫЕ УСТРОЙСТВА

И АППАРАТУРА СОПРЯЖЕНИЯ ЭВМ

С ЭЛЕМЕНТАМИ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ СТАНЦИЙ

В качество терминалов в экспериментах на СИ получили распространение алфавятно-дифровые дисилен типов VIDEO-TON-340 лип ЕС 7168, МЕВА 7953 (СМУ209), ЭЛЕКТРОНИКА 15-ИЭ-00-013-01, а также дисилен с сенсорной клавнатурой разработки ИАФ [11]. Все эти терминалы поддерживаются существующими операционными спстемами. Для распечатки данных в работах на СИ преимущественно используется цифронечатающее устройство (ЦПУ) DZM-180. Модеринзация ЦПУ делает возможным их копользование на в графяческом режиме. Подключение терминалов и ЦПУ к ЭВМ производится либо через систему последовательной связи (ОДРЫ) [8], либо через стандартный ивтерфейс V24 (ОДРЯТА и ЭЛИЕКТРОНИКИ).

Вся аппаратура сопряжения ЭВМ с элементами экспериментальных станций выполнена в стандарте КАМАК. Это дает единообразне используемой аппаратуры и соответствующего программного обеспечения пля работы с ней, упрощает замену пеисправных блоков, позволяет легко модериизировать экспериментальные станции. За репким исключением, используемые на станциях СИ КАМАК-блоки созданы в ИЯФ. К пастоящему времени в пиституте разработапо большое количество (~100) различных типов КАМАК-блоков. По аппаратуре сопряжения разные экспериментальные станции отличаются фактически только различными наборами таких блоков. Типичный набор КАМАК-блоков (модулей), наиболее широко используемых на экспериментальпых станциях СИ, показан па рис. 4.6. Обязательным элементом такого набора является крейт-контроллер. обеспечивающий взаимодействие ЭВМ с любым молулем в крейте. При работе с ОДРАМИ и ОДРЯТАМИ до последнего времени использовались два типа контроллеров последовательной связи с ЭВМ-КО601 [12] и СС-24. Оба контроллера имеют собственные запоминающие устройства (ЗУ) (32 и 256 К 24-разрядных слов соответственно) для записи NAF-ов и обеспечивает ограпиченную организацию быстрого (~1,5-3 мкс/команпу) межмодульного взаимодействия внутри крейта без участия ЭВМ. В настоящее время в ИЯФ разработан простой контроллер СС-24 без собственного ЗУ.

Рис. 4.6. Примерный набор нанболее широко используемых в экспериментах на СИ КАМАКмодулей.

При работе с ЭВМ ЭЛЕК-ТРОНИКА в настоящее время фактически единственно используемым является простой контроллер с посленовательной связью [13], функппонально совместимый с известным контроллером CC-11. Ha ούμινιο шину ЭЛЕКТРОНИКИ-60М **v**станавливается драйвер последовательной связи, обеспечивающий подключение ло шести указанных контроллеров [13].



Самым распространенным, по-видимому, является модуль «Цветной растровый дисплей ЦДР-2». Модуль обеспечтвает отображение на цветном дисплее графической информации в растре размером 256 × 256 точек, каждая па которых может иметь один из воссыми цветов. Устройство спабяжено аппаратными средствами для генерации символов, построения векторов, заполнения прямоуговыцых областой, сдвигов изображения [14].

В экспериментах на СИ очень широкое применение получили шаговые двигатели различных типов. Практически на любой экспериментальной станции используется от одного-двух до десятка п болсе таких двигателей. Для управления шаговыми двигателями применяется два типа КАМАК-модулей: УШД-2 п ИШАК. Блок УШД-2 выполняет команды на отработку шаговым пвигателем заланного числа шагов в выбранном направлении. От ЭВМ задаются такие параметры движения, как начальпая частота шагов (0-5100 Гц), скорость изменения частоты (0-102 тыс. Гц/с), время ускореппя/замедления (0-510 мс). Блок ИШАК преднавначен для разветвления управления от одного модуля УШД-2 на четыре шаговых двигателя. К одному блоку УШД-2 можно подключить до 10 блоков ИШАК. Модули УШД2 и ИШАК обеспечивают управление маломошными шаговыми двигателями непосредственно от этих модулей или мощными двигателями через усилители мощности, выполненные в стандарте ВИШНЯ [15].

При визуальной (например, по ренттеполюминофору) настройке монохроматоров, коллиматоров, образцов весьма удобимм является использование модуля «Ручка» с выпосным па удаление от терминала пультом. Последний включает в себя собственно ручку вращения и набор кюопок, с помощью которых при работе в ЭВМ соответствующей программы можно выбрать нужный шаговый двигатель для управления, оперативно язменять скорость и направление его движения.

Для измерения аналоговых сигналов с усилителей ионизационных камер и других токовых детекторов, с различных датчиков (положений, температуры и г. д.) широко примениются модули аналого-цифровых преобразователей (АЦП) и коммутаторов апалоговых сигналов (КАС). Из большого набора разработанных в ИЯФ АЦП нанбольшее распространение и элспериментах на СИ получил блок интегрирующего вольтметра ЦО609. Влок обеспечивает погрешность преобразования 0,005 %, имеет два давалозана входных наиряжений ±8,192 В и ±512 мВ, позволяет проводить измерения с временами интегрирования 5, 10, 20, 40, 80, 160, 320 мс. Входное сопротвление блока применяются несколько типов КАС с ключами, выполненными нак на полупроводниках, так и на герконах, с числом коммутируемых

При работе с детекторами кваитов в режиме счета широко применяются модуль «Таймер» и различные модули счетчиков. Бою «Таймер» имеет внутрепний 16-разрядный счетчик для отработки задаваемой длительности временного интервала. Цена одного разряда может быть установлена на 1, 10, 100 мс или а. Точность отработки временного интервала составляет ±50 нс [4]. В качестве счетчиков используются три типа модулей: 8-канальный 16-разрядный счетчик с максимальной скоростью счета до 6 МГц и входным сопротывление SO СМ; 8-канальный 24-разрядный счетчик со скоростью счета до 6 МГц и входом ТТЛ; 4-канальный 24-разрядный счетчик со скоростью счета до 50 МГц и входных сопротивлением SO Ом [4].

Для включения и выключения от ЭВМ различных устройств и систем на экспериментальных станциях (управление рентгеновскими шторками, включение сигнализации о срабатывании концевиков шаговых двигателей и т. д.) используется модуль управляющего рептстра [17].

Во многих экспериментах требуется быстрое буферное ЗУ. Необходимость в таком устройстве возникает при работе с быстрым измерителем временных интервалов [18], с блоком амплитудного преобразования [19] и т. д. В ИЯФ разработано несколько танов модулей ЗУ, которые пироко псиользуются в экспериментах па СИ. Кроме ЗУ 128 К (электронного диска) большое распространение получили ЗУ на 16 К 16-разрядных и 64 К 24-разрядных слов с возможностью записи информации по передней панели и страничной организации памятия [20, 21]. Максимальная частота обращений для этих блоков в инирементамо режиме составляет 500 кГд, в буферном режиме — 1 МГп.

Перечисленный набор КАМАК-модулей заведомо не исчерпывает всех типов используемых в экспериментах на СИ блоков. Тем не менсе но нему можно составить представление об уровне и возможностих используемой аппаратуры сопряжения ЭВМ с оборудованием экспериментальных станций.

Системы автоматизации экспериментов па СИ в ИЯФ в настоящее время внолие удовлетворяют основным требованиям по сбору и обработке данных. Однако уже сейчас на некоторых экспериментальных станциях существует проблема обработки больших массивов панных. Существующие системы автоматизании уже не обеспечивают решение этих задач за приемлемые времена. Кажется логичным создавать для этих целей рабочне станции на основе широкого использования специальных быстрых процессоров и специализированных систем вывода массивов информации в удобном для восприятия виде. Однако пока еще не выработан общий подход к этой проблеме. Можно ожидать, что в ближайшие годы какие-то варианты решения проблемы булут реализованы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1 Кулипанов Г. Н., Скринский А. Н. // УФН.- 1977.- Т. 122, вып. 3.-C. 369-418.
- 2. Кулипанов Г. Н. // Тез. докл. І Всесоюз. совещ. по автоматизации науч-ных исследований в ядерпой физике. Киев, 1976. С. 110-112.
- 3. Пискунов Г. С., Тарарышкин С. В. // Автомстрия.— 1986.— № 4.-C. 32-38.
- 4. Блоки, выполненные в стандарте КАМАК: Информационный материал .--Препр./ИЯФ СО АН СССР. - Новосибирск, 1985. 82 с.
- 5. Алешаев А. И., Белов С. Д. Операционная спотема ЭВМ ОДРА для управ-
- Алешнаев А. Н., Белов С. Д. Операционная спетема эдем ОДРА для управления экстрофизическими установками в ИИФ СО АН СССР. Препр./ ИЯФ СО АН СССР. Новесибирск, 1980. 49 с.
 Левичев Б. В. // Доклады́ II Всесовоз. ссмпнара по автоматлзации на-учных исследований и ядерной физике и смежных областях. Ново-сибирск, 1982. С. 149-157.
 Асцинаев А. Н. // Автометрия. 1986. № 4. С. 39-45.
 Инфонтов Б. И. // Автометрия. томущки исследований на основа применения ЭВН. Материалы колференции. Новосибирск, 1977. .
- C. 154-156.
- 9. Белов С. Д. Работы молодых специалистов, выполненные в ИЯФ СО АН СССР в 1977-1978 годах.- Новоснопрск, 1978.- 40 с.
- 10. Бейлин М. В. Системное матобеспечение многомашинного комплекса

- Всіянні М. В. Системное матобеепсіенпе многолаштипного комплекса автомятизациці физического эксперимента. Препр./ИЯФ СО АН СССР. Новоспбярек, 1982. 29 с.
 Нифонтов В. И. // Анфавитно-лифровой дисляй с сепсорной клавнату-рой. Препр./ИЛФ СО АН СССР. Новоспбирск, 1982. 18 с.
 Аксенов Г. А. // Сб. тр. II Всесоюз. симп. по модульным пифримацион по-вичислительным системым. М., 1980. С. 89 93.
 Нифонтов В. И. Контроляер и драйвер для организации связи в после ровательном виде между ЗВМ «Занектроника-бо в кройтами КАМК. Препр./ИЯФ СО АН СССР. Новоспбирск, 1982. 25 с.
 Китор З. Циетоно прастоярый писляёц Ш.Р.2. Пист./ИЯФ СО АН
- 14. Купер Э. А. Цветной растровый дисплей ЦДР-2.— Препр./ИЯФ СО АН СССР.— Новосибирск, 1984.— 18 с.

- Крогов С. В. Блоки управления шаговыми двигателями в стандарте КАМАК.— Препр./ИЯФ СО АН СССР.— Новосибирска, 1982.— 12 с.
 Голубенко В. И. / Антометрия.— 1986... № 4. С. С. 63.—72.
 Нифонтов В. И. / Выводные и вводные регистры в стандарте КАМАК.— Препр./ИЯФ СО АН СССР.— Новосибирск, 1982.— 19 с.
 Нифонтов В. И., Сандина, В. В. Измеритель временных интервалов для и сострание состав и примет.

- спектроскопических измерений.- Препр./ИЯФ СО АН СССР.- Новоси-
- бирок, 1962. 12 с. 9. Dementy E. N. // Nucl. Instr. Meth. 1966. V. A246. Р. 549-551. 20. Imports B. H. Campus B. B. Унпределяное запомпиающее устрой-20. Imports B. H. Campus B. B. Унпределяное общее составляется и сост ство в стандарте КАМАК .- Препр./ИЯФ СО АН СССР .- Новосибирск. 1982.- 10 c.
- Шейнгезихт А. А., Смярных В. В. // Тр. VI Всесоюз. совещ. по исполь-зованию синхротронного излучения СИ-84.— Новосибирси, 1984.— C. 109-111.

Глава 5

ДИФРАКТОМЕТРЫ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

5.1. СТАНЦИЯ МАЛОУГЛОВОЙ ДИФРАКТОМЕТРИИ

С ВЫСОКИМ ВРЕМЕННЫМ РАЗРЕШЕНИЕМ

5.1.1. Малоугловые камеры

Камеры для монохроматической пифрактометрии. Задачей малоуглового рентгеновского эксперимента является регистрация рассеянного излучения как функции угла в области от 1' до 2-3°. В этой области присутствуют десятки дифракционных максимумов, угловое расстояние между которыми измеряется несколькими миллирадпанами. Таким образом, метод малоугловой дифракции предъявляет жесткие требования к коллимации первичного пучка - последний должен иметь очень малый размер в области детектора. Для уменьшения ошибок измерения, т. е. для практического улучшения разрешения дифракционных максимумов, увеличивают расстояние образен — детектор в несятки раз.

Использование детекторов с малым пространственным разрешением также требует увеличения расстояния образец - детектор по нескольких метров. Большой путь рентгеновского луча в воздухе приводит к существенному уменьшению интенсивности за счет поглощения и к появлению паразитного излучения при рассеянии рентгеновских лучей. Чтобы избежать этого, путь рентгеновского луча обычно вакуумируется.

В малоугловой методике особое внимапие должно быть уделено уменьшению паразитного фона, возникающего на устройствах формирования пучка. Слабое рассеяние биологических объектов может полностью маскироваться паразитным фоном. Уменьшение фона обычно достигается введением специальных «фоновых» щелей. Оптимальными фоновыми щелями являются четырехипторочные щели с независимым управлением каждой шторкой, что позволяет перекрыть фон пучка любого прямоугольного сечения.

Проблема коллимации в методе малоугловой дифракции решается несколькими способами. Использование системы диафрагм или щелей позволяет получать хорошее разрешение, по очень сильно уменьшает светосплу камеры, а в случае щелевой коллимации искажает дифракционную картину и при обработке экспериментальных дашных требует введения сложных коллимационных поправок.

В начестие светосильных систем пспользуют фокуспрующие системы коллимации на основе изогнутых зеркал и кристаллмонохроматоров. Фокуспровка в несколько раз увеличивает плотпость потока. В случае фокуспрующих систем увеличеные растопния образец – детектор практически не уменьшает плотности потока в илоскости регистрации, тогда как в случае обычпой коллимации илотность излучения будет спижаться пропорционально квадрату расстояния.

При использовании СИ малая расходямость пучка упрощает коллимационпую систему: друх свищовых днафрагм оказывает ся достаточно, чтобы сформировать пучок ревтгеновских лучей, удовлетворяющих требованиям эксперимента. Используя фокуспрующую систему на основе паогнутых зеркал и кристал-молотроматоров, можно полностью исключить расходимость пучка СИ.

Существенным требованием к конструкции реитгеновской аппаратуры при работе с СИ является необходимость дистанционного управления. Это прежде всего диктуется повышенной радиационной опасностью в зопе эксперимента.

Малое время экспозиции заставляет упростить и автоматизировать замену образцов, смену кассет, перестройку аппаратуры на новый режим и т. п.

Камеры с коллимацией при помощи диафрагм. В первых малоугловых эксперпментах па ДЕЗИ [1] п на ВЭПП-З [2] примеиляпись очень простые схемы малоугловых камер с расстоянием обрааец — детектор ~1 м. В Институте биофизики АН СССР создана специальная малоугловая камера КСИМ-З для исследования структуры биополимеров [3]. Телескопическая конструкция камеры позволяет менять расстояние обрааец — детектор в пределах 250-1000 мм. Общий вид малоугловой камеры КСИМ-З представлен па рис. 5.1. Все элементы камеры расположены на оптической скамье длипой 1,5 м, легко передвигаются по ней п закрепляются в любом месте.

В качестве коллимационной системы использовались две точечные свищовые двафратмы (геометрия коллимационной системы рассчитывалась по работе [4]). Камера КСИМ-З была усиешпо применена и для регистрации диффузного малоуглового рассеянию от белковых растворов [5]. Репттенограммы, получеш-



Рис. 5.1. Камера КСИМ-З для малоугловой дифрактометрии на синхротроппом излучении.

ные с помощью этой камеры, представлены на рис. 5.2. и 5.3. Институтом блофизики АН СССР совместно с Институтом ядериюй физики СО АН СССР создана серия малоугловых камер с расстоянием образец — детектор до 3 м. Удачным коллиматором в малоугловых камерах оказался щелевой коллипалор Кратки [6]. Эта система коллимации использовалась в малоугло-





Рис. 5.3. Рентгенограмма живой портияжной мышцы лягушки в состояции покоя, получешная фотометодом.

Расстояние образец — пленна 1000 мм, экспозиция 30 мин. Видиы слосвые линии основного периода 428 Å (первая слосвая) и серия меридиональных рефленсов в области 600-50 Å.

Рис. 5.2. Рептгенограмма коллагена, полученная фотометодом. Расстояние образец – пленка 1096 мм, экспозиция 10 мин, $\lambda = 1.71$ Å.

вой установке [7]. Камеры были снабжены термостатпрованнымп коветами с полупроводниковой термобатареей, позволяющими исследовать биологические образцы при температуре 3-4 °C. Охлаждение образца оказалось очень важным фактором, предохрапяющим ого от радиационного повреждения интенсивого пучка СИ. Время экспозиции меньше чем на обычных трубках почти па два порядка, при этом значительно упрощается копструкция малоугловых камер и улучшается разрешение.

Камеры с фокуспрующей оптикой. К настоящему времени создано несколько вариантов камер с фокуспрующей оптикой. Как отмечено выше, на источниках СИ в малоугловых рентеповских камерах используется традиционная схема расположения фокуспрующих элементов, в которой фокуспрующее зеркало располагается перед фокусирующим кристаллом-монохроматором [8-14]. Причем для рентгеновской трубки схема считается более выгодной по сравнению со случаем, когда монохроматор располагается внереди зеркала. При использовании трубки приближение зеркала к источнику диктустся увсличением апертуры, так как приближение к нему монохроматора цеязбежно сопровождается одновременным увеличением угла между поверхностью кристалла и отражающей плоскостью и практически не приводит к реальному выигрышу в анертуре. Поэтому максимально приближают к трубке зеркало, что дает увеличение светосилы камеры с определенной потерей разрешения в вертикальном направлении.

В конструкции камер, разработанных в СССР, была использована пругая последовательность оптических элементов [15]. Для источников СИ более выгодно располагать зеркало за монохроматором, так как по вертикали пучок СИ ограничен несколькими миллиметрами и всегда можно сделать зеркало, которое собирало бы весь пучок по вертикали. В этом случае приближение зеркала с целью увеличения апертуры теряст свою целесообразность. Выще отмечалось, что монохроматор в пучке СИ ведет себя аналогично зеркалу, так как излучение является «белым». В горизоптальной плоскости СИ пепрерывно и неограничено, следовательно, при приближении монохроматора можно получить большую входную апертуру по горизонтали, так как не нужно менять угол между поверхностью кристалла и его отражающей плоскостью. Очевидно, что помещение монохроматора перся зеркалом одновременно означает определенное удаление его от образца, так как длипа зеркала составляет несколько десятков сантниетров, а пиогда даже более метра. Поэтому горизоптальный размер пучка, падающего па образец, уменьшается при одновременном увеличении входной апертуры, и это может нать вышгрыш светосилы камеры по сравнению со случаем, когда зеркало располагается перед монохроматором.

Вторым преимуществом схемы размещения зеркала за мопохроматором является уменьшение тепловых и радиационных нагрузок на зеркало. Последиее имеет большое значение, так как к зеркалам предъявляются жесткие требования по точности изготовления. Они имеют большой раднус изгиба (свыше 500 м), а также напыленную поверхность, которая разрушается в немонохроматичном пучке СИ. Как показали предварительные эксперименты, кристаллы-монохроматоры могут работать в «белом» пучке СИ длигельное время.

Некоторое увеличение размера пятна по горизонтали из-за перемещения монохроматора ближе к источнику СИ приводит к ухудшению разренения. Однако это не будет существению сказываться на работе камеры, особенио в случае размещения ее на накопителе ВЭПП-3. Как сказано выше, эксперимент на ВЭПП-3 проводится на расстояния кокол трех метров от источника СИ и при расстояниях образец — детектор 1—1,5 м, при этом размер пятна по горизонтали в фокусе камеры составляет 1-2,5 мм 15, 161. Хорошее разрешение можно получать только по вертикали, где фокусировка осуществляется зоркалом. Так как основные эксперименты выполняются с позиционно-чулствительтым однокоординатым цетектором, то ухудинение разрешения по горизонтали не отражается на достижении главной цели — увеличения светосилы с сохранением высокого разрошеция в одном направлении.

Камера МРФК-СИ размещалась в экспериментальном зале накопителя ВЭШІІ-З. Пучок СИ, отраженный и офокуспрованный в горизонтальном направлении молохроматором, попадает на зеркало, которое устраняет гармоники, кратиме основной длине волик, и фокуспрует пучок в вертикальном паправлении. Иосле зеркала размещаются две фоновые щели, между которыми расположена вакуумируемая трубка. Непосредственно за второй фоновой щелью располагаются держатель образца и вакуумируемая телескопическая трубка, регулируемая ловушка первичного пучка и детектор.

Все элементы камеры, кроме кристалл-монохроматора, размещены на регулируемых подставках и крепятся на оптической скамье и швеллере, которые могут быть повернуты на пужный угоя в относительно плоскости кристалла-монохроматора.

Камера испытала в экспериментах на накойнительйом кольце ВЭПП-3. На рис. 5.4 показана рентепограмма живой портияжпой мышцы лягушки в покое, зарегистрированная пленкой. Рептгенограмма характеризуется высоким пространственным разрешением (папример, разрешены рофлексы 141,5 и 143,4 Å) и малым временем регистрации. Экспозиция в данном случае составляет величину, примерно в 100 раз меньшую, чем в случае применения трубки с вращающимся аподом геператора бХ-6 [15-18].

Ренттенограмма сокращающейся мышцы, зарегистрированиая одлокоординатным пропорциональным детектором, приведена на рис. 5.5. Наиболее сильные экваториальные и меридиональные рефлексы па репитенограмме можно получить за время 0,20,3 с со статистической ошибкой ~3 %. Камера МРФК-СИ обеспечивала максимальную загрузку детектора 250 кГц при токе накопителя 20 мА.

Было проведено также испытание камеры МРФК-СИ в экспериментах по изучению малоуглового диффузного рассеяния растворов белков [5]. Результаты испытания свидетельствуют о возможности использования камеры в экспериментах такого рода. Достигнуто сокращение экспозиций в несколько десятков раз по сравнению с таковыми в случае применения наиболее мощных ренителовских трубок.

Следующим этапом разработки малоугловых камер с фокусирующей онтикой стало создание светосильной камеры ФРАКС [19]. Детальное описание всех узлов камеры приводится в работе [20].

Малоугловая камера ФРАКС имеет дистанционное управлеине основными элементами. Управление камерой осуществляется 15 дингатолями, с помощью которых производят нагаб фокуспрующих элементов, установку зеркала на пучок, перемещение шторок фоновых щелей, управление ослабителем и юстировку



ловушки первичного пучка. Ловушка служит для мониторирования первичного пучка. Для камеры ФРАКС разработан ослабитель пучка СИ, позволяющий уменьшать интенсивность в 1,5-10³ раз. Это позволяет изменяль

Рис. 5.4. Рептгенограммы живой портияжной мышцы лягушки в состояния покоя.

Камера МРФК-СН, регистрация пленкой, меридиан, экспозиция 25 мин, ток накопителя 13 мА, дялиа вояны 1,82 А, расстояние образец — пленка 1860 мх.



Рис. 5.5. Рептгенограмма живой портняжной мышцы лягушки в экваторпальном направлении дифракции.

Регистрация позиционно-чувствительным пропорциональным детектором, экспозиция 0,5 с. условля эксперимента при ненэменном режиме работы наконителя. Ослабление интепсивности осуществляется введением в монохроматированный иучок пластии слюды различной толщины, курепленных на вращающемся диске. В каморе ФРАКС реализован модульный приции конструкций, каждый модуль может быть использован в качестве самостолтельного устройства в экспериментальной схеме побой конфигурации.

Камера ФРАКС па накопптельном кольце ВЭПП-3 с 1979 по 1982 г. применялась в экспериментах по исследованию динамики структурных изменений в процессе сокращения мыницы 120-221.

Камеры для энергетической дифрактометрии. При использовании СИ у экспериментаторов появилась дополнительная возможность уменьшить время экспозиции за счет применения сплошного сцектра СИ в тех случаях, когда скорость счета не является лимитирующим фактором.

Развитие метода энергетической дифрактометрии было стимулировано применением СИ в репитенографических исследованиях и совнало с прогрессом в области создания полупроводинковых детекторов (ППД) с высоним энергетическим разрешениием. ППД разработаны целым рядом фирм за рубежом. В СССР подобные детекторы создает НПО «Буренестини» [23]. Использование метода 0 = const требует разработки аппаратуры специальной конструкции.

Необходимо подчеркнуть, что создание малоугловой аппаратуры для знергетической дифрактолетрии — повое наиравление в рептгеновском приборостроении. До сих пор ин одна фирма за рубеном не выпускает подобного оборудования, а в работах с СИ используются только лабораторные макеты [23, 24, 40]. В Илституте биофтязики АН СССР в 1975-1976 гг. была создана камера КСИМ-5 [25]. Испытания се на накопителе ВЭПП-3 (Ипститут лдерпой физики СО АН СССР) продемонстрировани принциплальные прециущества метода Ф = соозк для решения определенного класса задач [5, 23, 25] и позволили сформулировать технические требования для разработки модифицированиой камеры КСМУС.

Разработанная камера КЭМУС имсет щелевую и точечную коллимацию первичного пучка с переменным сечением. При целевой коллимации предусмотрена как горизоптальная, так и вертикальная орнентация длинной стороной сечения пучка. Это обеспечивает регистрацию рассеминого излучения в мериднопальном п в экваториальном направлении при вертикальном размещении образца. Большой выбор коллимирующих систем позволяет достаточно тибко варьировать условия эксперимента в зависимости от вида решаемой задачи. Миникальный угол регистрации при щелевой коллимации составляет 5 · 10⁻⁴ рад. Камера позволяет регистрировать периоды повторяемости структуры в интервалах 6,2-3000 Å по меридиану, 12,4-3000 Å по укватору для интервала энергий фотопов в первичном лучке 4,5—40 кзВ. Узел образца обеспечивает вертикальное размещение объекта, сто термостатирование с точностью ±0,5 °С и плавпое перемещение и перемениой скоростью перпендикулярио пучку СИ с одновременной регистрацией усилия, развиваемого мышщей. Такос перемещение позволяет существенно уменьшить радпационную пагрузку па образен. Детектор жестко связан с системой, задающей угол паблюдения, и электрически изолирован от камеры. Уровень собственного фона камеры минимальцый. Созданиюе математическое обеспечение позволяет: 1) вводить поправки на спектральное распределение, поглощение, заввоимость структурного фактора от энергии фотопов и эффективности детектора от энергии; 2) проводить модельную кривую по реитгенограмме для вычитация фона, определять интенспвиость дифракционных максимумов и ошноки их определения.

Камера проста и удобла в эксплуатации, время полной юстировки на пучке занимает около 30 мин. Она может успешно использоваться как при псследовании биологических объектов, так и при изучении структур полимеров, металлов, стекол, катализаторов и пр. и в статике, и в динамике.

5.1.2. Регистрация рассеянного излучения

При работе с СИ в малоутловой дифрактометрия могут приментиться различные методы регистрации, каждый из которых имеет слои достоинства и недостатии. Преимущества фотометода: простота в обращении, отсутствие требований к стабильности интенсивности, так как информация накапливается одновременно на всем поле репттенограммы, высокое разрешение спектральных, иний. Недостатком фотометода в первую очередь является то, что в случае точных памерений интенсивности необходимо работать в области нормальных почернений, т. е. выбирать отитиальные экспозиции для разных групп рефлексов. Кроме того, эффективность ретгеновских лиенок существенно зависит от длины волны и не во всей используемой области СИ мопотонна (скачки поглощения на К- и L-краях Ад в Вт) [27].

Применение для регистрации рентгеновской дифранции счетчиков имеет большие преимущества по сравнешно с фотометодом. Счетчики квантов прекде всего позволяют повысить тулствительпость измереция интегральной интенсивности, что при точности, сравнимой с точностью фотометода, позволяет значительно сократить ремя экспозиции. Преимуществом метода является также возможность получения результатов непосредственно в цифровой форме и обеспечение значительно более широкого интервала лигейных измереций интенсивностей рефлексов.

В качестве счетчиков рештеновских квайтов можно испольвовать те же типы детекторов, которые применяются в ядервой физике для регистрации у-излучения, - сзетчики Гейгера, пропорцпопальные, сцинтпляяционные и полупроводпиковые. Однако при исследовании с помощью обычных счетчиков дифракционная картина регистрируется последовательно путем сканирования детектора со щелью перед ним по дифракционным максимумам, а это существенно увеличивает время эксперимента. Отсутствие временной стабильности СИ делает регистрацию возможной голько с применением монитора. Такие счетчики могут быть использованы для контроля интенсивности коллимированного пучка и юстировки рентгеновских камер.

Возможен, однако, способ одновременной регистрации многих цифракционных максимумов счетчиками с указанием местоположения максимума (рефлекса). Это осуществляется с помощью одно- плп двумерных координатных счетчиков, разработка и усовершенствование которых интенсивно велись в последнее время как в пашей стране, так и за рубежом [28-34]. Эффективность таких счетчиков достигает 100 %. Пространственное разрешение координатного детектора можно определить так же, как и в случае пленки, числом элементарных детекторов в 1 м. Наиболее существенной характеристикой одно- или двумерного координатного детектора является общее число регистрирующих элементов, из которых состоит данный детектор. В случае пропорциональных многопроволочных координатных детекторов разрешение по координате, перпендикулярной анодным проволочкам, определяется расстоянием между последними (достигнутое в настоящее время разрешение составляет 2 мм), а по координате, параллельной анодам, получено разрешение в 0,15 мм (ширина на полувысоте) кваптов с энергней в несколько килоэлектроивольт. Угловое разрешение координатного детектора можпо регулировать путем измещения расстояция образец - детектор. Последпяя процедура приводит к изменению пределов исследуемой области дифракции, которая определяется размерами входного окна детектора, расстоянием до образца, а угловое разрешение - размером элементарного детектора п расстоянием образеп — летектор.

Выше на рис. 5.5 взображела рептгенограмма мышцы, заретистрированная однокоордипатным пропорциональным детектором (время получения такой рептгенограммы на два порядка меньше, чем в случае. фотометода). На рис. 5.6 привадела рептгенограмма полизтилена, зарегистрированная двухкоординатным детектором, рептгенограмма спята с экрана дисилея, работающего в линии с ЭВМ.

Использование двухноордппатного детектора позволяет также на два порядка умецьшить время регистрации дифракционной картины по сравиению со временем регистрации па фотолленку. Одпако двухкоординатный детектор значительпо уступает фотометоду в разрешающей способности. Повышение разрешения дифракционной картины при использовании двухкоординатного детектора, полученное путем увеличения растояния образец детектор, подемонстрировано на рис. 5.6, 6.



Рис. 5.6. Рептгепограмма полиэталена под большими углами дифракции, полученная на двужкоординатном детекторе.

Эксполиция 10 с, расстоиние образец — детектор 35 мм, меридкональный рефлекс 7 Å, экваториальный — 3,8 Å,

Временное разрешение определяется быстродействием элементарного детектора, электропного измерительного устройства и запоминающего или изчислительного устройства. Допустимые загрузки пропорциональных однокоордипатных детекторов определяются применлемой электроникой и достигают в настоящее времи 250 кГц.

Последние годы для регистрации СИ используется повый тип детекторов на основе микрокапальных пластин, плеющих высокое пространственное разрешение по двум координатам. Время экспозиции порядка нескольких секупд для биологических образцов [35].

Иной способ регистрации дифракционной картины с применспием немопохроматизированного СИ возможен при использованаи полупроводинковых спектрометров высокого разрешения в методе 0 = const или эпергетической дифрактометрии [5, 23]. Подробнее этот способ описан инже.

5.1.3. Этапы развития малоугловой дифрактометрии

с высоким временным разрешением

Методика дифракционного кино создавалась на основе использования спихротропиого палучения накопителя ВЭШІ-3, высокочувствительного коордипатного детектора с анализатором ли ЭВМ и малоутловых целевых и фокусирующих камер.

Методика дифракционного кино состоит в регистрации серии дифракционных картин (кадров) состояний структуры, соответствующих последовательтым стадиям процесса мышечного сокращения. Каждый кадр пмеет привязку к кривой развития напряжения и соответствует состоянию структуры в данный момент развития пзометрического сокращения мышцы. Необходимая длительность отдельного кадра в пределях одного фильма задается в зависимости от условий эксперимента. Число кадров выбирается псходя па длительности процесса сокращения и времениого разрешения, по ограничивается емкостью памяти анализатора или ЭВМ, используемых в эксперименте. Последонательным этапом развития методики дифракционного кино была разработка 8, 32-, 64-кадрового вариантов [16-18, 21, 25, 36-421.

Для набора достаточной статистики информация суммируется путем многократного повторения циклов сокращения мынцы. В кандом конкретном эксперименте чноло необходимых циклов определяется времениым разрешением фильма (длительностью кадров), а также тем, что питегральная экспозиция кадра в настоящей схеме эксперимента должна быть пе менее 0,2 с. Это связано с тем, что система регистрации имеет предельную скорость счета 250 кГи; такая загрузка системы достигалась уже при токе в накоплетее 20 мА.

Принципнальным моментом в методике дифракционного кино являются необходимость синкровизации запуска процесса мышечного сокращения и системы регистрации дифракционных картип, а также точного соблюдения временпой последовательности срабатывания элементов экспериментального комплекса: открытие лучка, откачка раствора из кюветы, регистрация дифракциовной картины от нестимулированной мыницы, электростимуляцая мышцы и пр. Для управления экспериментом такого типа требуются ЭВМ и специальная программа управления.

Методика на основе миотокайального анализатора «Кино-8». Первый вариант методики дифракциопного кино создан и апробирозан в 1975 г. Методика разработана на ослове использования малоутловой щелевой камеры КСИМ-4 с плоским монохроматором, однокоординатного детектора и многоканального анализатора ДИДАК. «Кино-8» позволяло синмать восычкадровый фильм с временных разрешением 1-500 мс [17, 18, 25, 36]. Дифракционная картина регистрировалась с помощью однокоординатного детектора, установленного на торце малоугловой камеры. Распределение зарегистрировалась с помощью однокоорфиксировалось анализатором ДИДАК, память которого была разделена на 8 групп по 500 капалов в каждой группе. Накопленная в анализаторе информация выводилась на перфоленту для последующей обработки на ЭВМ.

Методика «Кино-8» апробирована в двух типах экспериментов: 1) по исследованию процесса однночного изометрического сокращения мыццаю лягупики в режиме суммирования информации отдельных циклов [25]; 2) по изучению отдельных стадий контрактуры (длительное сокращение в режиме одного цикла без суммирования [47]). Фильмы спимались при вертикальной и горизонтальной ориентации мышцы. Эксперименты по одиночному сокращению проводились с временным разрешением 4, 8, 16, 32 ис. Для набора стапистики (несколько тьксяч событий в дифракционном максимуме) требовалось 100—300 сокращений. Исследование контрактуры велось с разрешением от единиц сскули до долей секунды.

Недостаток рассматриваемой методики — малое число кадров. Это не позволяло регистрировать с высоким разрешением одновременно весь процесс сокращения. Исалетсяьно было уменьшить и число новторлющихся циклов, т. е. увеличить светосилу камеры. Требовалось исключение облучения мышцы в интервалах между циклами, чтобы уменьшить рацационную нагрузку на мышцу. Исдостатком системы было также ограниченное быстродействие регистрирующей системы, которое лимитировалось анализатором и составыло 30 кГд.

Спижение временного разрешения и уменьшение числа суммирующих циклов требуют повышения интененвности пучка, а следовательно, и быстродействия реагнитрующей системы. Следующим этаном в развитии методики КИНО-8 было создание светосильной фокуспрующей камеры в псиользование детектора в линим с ЭВМ.

Метојшка на основе ЭВМ (КИНО-32 и КИНО-64). Применение ЭВМ, работающей в режиме анализатора и управляющей эксперличитом, позволило знатителько расширать возможность метојшки дифракционного кино [17, 18, 37]. Число кадров увеличено до 32. Для управления экспериментом составлена программа, которал обеспечивала: 1) управление затвором пучка СИ; 2) запуск электростимулятора; 3) распределение и сбор внформации, поступнющей от координатного детектора, по кадрам (число кадров в одном цикле 1—200 мс); 4) возможность митогкратного повторения циклов с задапным интервалом между вики; 5) возможность суммирования п информации по циклам; 6) визуализацию на дисилее или осциллографе дифракционной картины; 7) вывод массива экспериментальных данных на печать.

Дальнейшим развитием методики дифракционного кино явились разработки 64-кадрового варианта на основе макроЭВМ ЭЛЕКТРОНИКА-60. В качестве коллимационной системы использовались малоугловые фокусирующие камеры МРФК-СИ [15], а с 1979 г. – камеры ФРАКС с дистанционным управлением [19]. Было разработано всиколько моделей методики [16, 21, 38–41]

Схема последнего варпанта методики пифракционного кино приведена на рис. 5.7 [42]. Экспертментальтая установка состопт из фокуспрующей малоугловой камеры, однокоординатного либо крестообразного детектора, электропики регистрации, управления и коммутации, узла образца. Электропики регистрации, управления в стандарте КАМАК, связываются с управляющей минфоЭВМ ЭЛЕКТРОНИКА-60 через контроллер. МинфоЭВМ ЭЛЕКТРО-



НИКА-60 имеет расширенную намять 56 К. Имеется дополнительная память на гибких магнитных дисках. В качестве периферийных устройств используются цветной дисплей на базе телевизора Ц-430, широкая цифропечать DZM-180, магнитофон Изот-5003. Управление системой осуществляется с терминала MEPA-79-53.

5.1.4. Конструкция узла образца

Принцип суммирования дифракционной информации по циклам ставит задачу контроля и поддержавия функционального состояния мынцы и сохранения параметров процесса сокращения в каждом цикле. Такие параметры, как длигёльность латентного периода и процесса сокращения, развиваемое усилие и пр., определяются температурой, амплитудой стимулирующего напряжешия, комичеством и частотой сокращений, утомяяемостью мынцы.

Для поддоржания и контроля функционального состояния мышцы разрабатывался специальный комплекс приборов: кювета, намерители силы, измеритель дляны мышцы, диафрагменный папос, полупроводниковый термостат. Чтобы свести к мпипкуму утомлиемость мыщцы, методика предусматривлая интервалы отхода мынцы между циклами сокращения. Для уменьшения радиационной нагрузки на мышцу во время отдыха путок налучепия перекърывался.

Различное пространственное разрешение малоуглового синхротронного дифрактометра в вертикальном и горизонтальном шаправлении, обусловленное различной расходимостью лучка СИ по вертикали и горизонтали (10⁻⁴ и 10⁻³ рад соответственно), вызвало необходимость разработки двух варнантов узла образца: с вертикальным и горизонтальным расположением образцов [42].

В работах [37, 39, 41] решена принципиальная задача объедилений в единый узея приборов и устройств, различных по своему функциональному назначению. Особенность ковструкции узяа образца определялась, с одной сторовы, теометрическими и функционально-временными параметрами мышцы, с другой конструктившой спецификой малоуглового синхротропного и лазерного дифрактометров.

Специально разработанные устройства узла образца (рис. 5.8) позволяли размещать мышцу в термостатируемой кювете с фивпологическим расклором, пропускать через кювету рептеповский и лазерный лучи, инщипровать сокращение мышцы путем электрической стимуляции (одпночпое сокращение, парное стимулирование, тетапус), обеспечивать различные режимы сокращения (изометрический, изотонический) и паменять характер сокращения мышцы путем различных механических воздействий (быстрые опускания, рывки, комбинпрованные режимы). Время быстрых отпусканий составляет неснольмо миллисекуци, измещение дляны мышцы – 4-2 %.



Рис. 5.8. Узел образца для горизонтального расположения мышцы.

Для измерения развиваемого мышцей усилия разработано песколько вариантов измерителей сямы на основе полупроводниковых тензорезисторов. Дианазон измеряемых сил 1-5 мН (0,1-50 г). Для регистрации изменения динны мышцы создан электроонтический измеритель с липейным дианазоном 0-5 мм.

В целях более эффективного использования «пучкового времсни» осуществлеца пдея одповременного проведения двух независимых экспериментов с последовательным автоматическим выведеянем двух исследуемых образцов на пучок [39].

Впервые с малоугловым рентгеновским дифрактометром был объедивен двухлучевой оптический (лазерный) дифрактометр. Коаксиальное совмещение рентгеновского и лазерпого лучей достигнуто с помощью лавсанового зеркала, отражающего лазерное и пропускающего рентгеновское язлучения [43].

Измерение смещения оптической дифракционной линии осуществлено. путем регистрации нитопсивности светового потока, модулируемого треугольной диафрагиой, помещениюй на пути +1-й дифракционной линии. В качестве опорного канала для учета аппаратурной функции используется — 1-л дифракционная миния, пропущенная черев примоуголькую длафрагиу [42, 44].

Совмещение рентиеновского и лазбрного дифрактометров дает возможноють: получить: "Структурную", информацию в рентиевое ском и оптическом диапазопах от одной и той же облаютия имыни. цы. Это позволлет изучать дипамику структурных перестроек в мышце одновременно на молекулярном и надмолекулярномуровяях с одним и тем же временным разрешенцем.

5.1.5. Устойчивость биологических объектов к повреждающему действию синхротронного излучения

Одним из наиболее сильных сперживающих факторов использования СИ в рептеноструктурном исследования биологических объектов было пренцоложение о поврежнающем лействии СИ большой интенсивности на образен. В работах Филлинса [45, 46] на ускорителе СПИАР проведено исследование стабильности белковых кристаллов. Оказалось, что устойчивость к повреждающему действию излучения не зависит от позы. а. скорее, определяется временем съемки. Например, кристалл азуонна, находящийся в общей сложности 28 ч пол пучком СИ, пе измения своих вифракционных свойств (за этот период был получен вссь экспериментальный материал). В то же время аналогичный консталл пои использовании фильтрованного излучеция трубки за 100 ч (меньшая интенспвность трубки потребовала большего времени для исследования) спизил интенсивность лифракционных пятен на 25 %. Такая устойчивость может быть результатом высокой монохроматизации пучка СИ (обычно используется $\Delta \lambda / \lambda = 10^{-4}$) и полного отсутствия длинноволнового излучения, которое значительно сильнее поглощается в образце.

Повреждающее действие мопохроматического СИ наблюдалось при исследовании живой мышцы методом малоугловой дифракции. Под пучком СИ мышца остеклепела, и от нее не удавалось получить хорошей рептгепограммы. Уменьшить повреждающее дсйствие СИ удалось понижением температуры образца до 2—3 °С. Возможно, повреждающее действие связапо с локальным нагревом образца и тепловой денатурацией белковых молекул. При непользовании немонохроматического палучения в методе θ = const прибегают к медленному передвижению образца во время съемки по отношению к чучку.

5.1.6. Порядок проведения эксперимента

После установки кювсты с мышцей на съюстированную камеру и калибровки тензодатчика проводилась предварительная съемка дифракционной картины от мышцы в покое при отсоедипенном стимуляторе. Это необходимо для того, чтобы проверять состояние образда и оценить необходимую длительность кадров и количество циклов. Далее ЭВМ получала задание на проведешне эксперимента [18, 47].

Впачале включался днафрагменный насос. Затвор, время срабатывання которого составляет около 800 мс, открывал сяпхротропный пучок. Днафрагменный пасос за время 1000 мс откачивал физиологический раствор из кюветы с мышцей. Затем вачивала работать система регистрации, распределлющая по задапной программе информацию от детектора по кадрам. После регистрации нескольких кадров заданной длительности от мыштор, пигульс которого вызывал сокращение мышцы. Тепзодатчик регистрировал развиваемую мыпцей силу, и поступающая от нето информация распределялась по кадрам в том же масштабе времени, что и информация от детектора. Номор последнего кадра из заданого количества являлся признаком конца цикла. С окопчанием регистрации затвор закрывалоя и насос подавал физиологический раствор обратно в кювету. Наступал период отдыха мышцы (обычно 30 с). Циклы повторялись заданное число раз.

Так как суммирование дифракционной картины по циклам вмеет смысл лишь при условия достаточно хорошего воспроизведения кривой панряжения от цикла к циклу, то особое внимание уделялось контролю за кривыми напряжения в ходе эксперамента. Программой предусматривалась регистрация 16 кривых напряжения в одном эксперименте независимо от количества циклов; на экране цветного графического дисплея в нерерывах между цикламя визуализировались разным цветом две кривые папряжения — первойачальная и «текущая». В случае прерывания эксперимента по каким-либо причинам программой предусмотрена возможность продолжения наберая информация с того цикла, на котором эксперимент был преревы

Во время сокращения на экране графического дисплея в 32кадровом варпанте визуализировались интегральные (по всем циклам) дифракционные картины отдельных кадров. Обычно выводплось на экран не более пяти кадров, так как при большем их количестве дифрактограммы начинают перекрываться. Номера выподпмых на экран дисилея кадров закладываются оператором в программу перед началом эксперимента.

В 64-кадровом варианте на экран графического дисплея во время сокращения выводятся рептгенограммы всех кадров со сдангом относительно друг друга в виде трехмерных гистограмм.

5.1.7. Программное обеспечение

Программное обеспечение управления экспериментом. Программное обеспечение методики дифракционного кино должно учитывать как специфический характер работы с сипхротронным излучением, так и характерные особенности изучаемого объекта – мышцы и мышечного сокращения [39, 47–49].

Программное обеспечение методики дифракционного кино содержит два тила программ: 1) управления экспериментом, сбора и предварятельной обработки данных; 2) математической обработки результатов — фильмов. Ниже будут приведены требования к программному обеспеченню методики дифракционного кино и описание его основных разделов.

Система нозволяет регистрпровать серии дифракционных картии (кадром) состояний структуры, соответствующих последовательным стадиля процесса мышечного сокращения путем раздедения временных интервалов (длигельности кадров). При этом каяхдый кацо, отражающий состояние структуры в данный момент сокращения мышцы, имеет жесткую времелпую привязку к криюй развития папражения. Информация с каждого временного интервала собирается в последовательных участках имяяти. Накоиление данных в памяти ЭВМ осуществляется с помощью снеднального устройства ввода — инкрементного канала.

Спотема нозволяет также регистрировать временной ход трех параметров сокращения мышцы: развиваемое усилие, пзменение длины мынцы и длину ее саркомера. Спгналы с измерителей этих парамотров через блок аналого-цифрового преобразования передаются в намить ЭВМ.

Для набора достаточной статистни информация суммируется путем многократного повторения циклов сохращения мышцы. В каждом конкретном эксперименте число необходимых циклов задается иременных разрешением фильма (длятельностью кадров), а также тем, что интегральная экспозиция кадра в настоящей схеме эксперимента должна быть не менее 0,2 с. Это связано с тем, что система регистрация имеет предельную скорость счета 250 кГц.

Для суммирования дифракционной информации по циклам необходимы поддержание функционального состояния мышцы п сохранение нараметров процесса сокращения в каждом цикле. Методика должна предусматривать питервалы отдыха мышцы междуу циклами сокращения. Для уменьшения радиационной пагрузки на мышцу во время отдыха пучок излучения должен перекрываться.

Принцянинальным моментом в методике дифракционного кино является необходимость онихронизации процесса мышечного сокращения и запуска системы регистрации дифракционных картин, а также точного соблюдения временной последовательности срабатывания элементов экспериментального комплекса: открытие лучка, откачка раствора на кювета, регистрация дифракционной картины от пестимулированной мышцы, электроствмуляции мышцы и пр.

Высокое временное разрешение методики дифракционного кино ставит перед программым обеспечением такие требования, как большое быстродействие при выполении арифистико-логических операций, оперативный обмен информацией с обелуживающей электроникой и периферийными устройствами. Программное обеспечение должно быстро восставаливаться после розможных сбоев в силу трудоемкости и дороговизны экспериментов с использованием слихротронного излучения.

Программное обеспечение управления экспериментом, сбора и предварительной обработки данных построено по модульному принципу, состоит на программы-молитора и программных модулей, выполняющих конкретные действия системы. Программы написаны на языке ассемблера ЭЛЕКТРОНИКА-60 и работают под операциолной систехной RT-11.

Программное обеспечение управления экспериментом, сбора и предварительной обработки данных позволяет оператору работать с системой в дивлоговом режиме. Язык управления систомой состоит из директив. Директива — указание оператора системе — представляет собой строку символов, вводнмую с клавиатуры терминала. Директива состоит из наименования (знаиацими наялются первые дав символа) и сипска параметрои.

Система содержит 18 директив, которые выполняют следующие действия:

- задашие программы фильма;
- запуск измерения по заданной программе фильма;
- окончапие измерения;
- продолжение измерения;
- повторение эксперимента;
- задапие формулы гистограмм;
- вывод гистограмм кадров на цветной дисплей по заданной формуле гистограмм;
- цифровая печать гистограмм;
- печать таблиц напряжения, длины мышцы и длины саркомера;
- запись фильма в файл па диске;
- чтенше фильма из файла на диске;
- запись фпльма на магнитную ленту;
- чтепне фильма с магиптной ленты;
- вывод комментариев на печатающее устройство;
- вывод объемпой гистограммы фильма па цветной писплей;
- просмотр содержалпя каналов на дисплее с номощью маркера;
- предварительный обсчет фильма и вывод графика интепсивностей рефлексов па цветной телевизор;
- вывод графика илтенсивностей рефлексов на печатающее устройство.

Дпрективы спстемы делятся па два типа:

- директивы, которые могут выполняться в любой момент ожидания сястемы повых директив;
- директивы, которые должны выполняться в строгой последовательности.

При преждевременном вводе директив второго типа система сообщает об этом оператору. Например, если пе задана программа фильма, то директивы, такие как запуск измерений, запись фильма на диск и другие, будут восприниматься системой как преждевремелные.
Ниже приводится описание работы некоторых основных директив.

После запуска спстемы память, отведенная под фильм (опа определлется самой системой), делится на три части: поле описателя фильма, поле кадров, поле кривых параметро мышцы.

Описатель фильма содержит все характеристики фильма и заполняется при работе модуля задания программы фильма. Иоле кадров следует за полем описателя, длина его зависит от количества задаваемых кадров. Максимальное число кадров определяется программию в зависимости от числа каналов в кадре и количества гниов снимаемых кривых. Поле кривых устанавлинается при задании съемки покадровой зависимости параметров мыницы. Система предусматривает тря типа кривых.

Задание программы фильма требует от оператора следующей пиформации об эксперпменте:

 число каналов в кадре (программпо можно задать три числа каналов: 256, 512, 1024);

- задержка на срабатывание затвора;

временной интервал между циклами;

тины снимаемых кривых;

— длительность кадров (число кадров система определяет сама);

режим сокращения мышцы;

- количество циклов.

Обратим винмание па то, что для более эффективного пспользования синхротронного пучка система поаволяет вести параллельную съемку с двух образдов, заполняя при этом промежутки, предназначенные для отдыха мышцы. В режиме друх экспериментов используется внешияя память на гибких дисках: в коще каждого цикла содержание намяти, отведенной флиьму, переносится на диск, перед пачалом цикла этого же эксперимента переносится обратно, в оперативную память.

Работа модуля запуска измерений заключается в следующих действиях: подается команда через релейный регистр на включение затвора, перекрывающего пучок СИ, п насоса, откачивающего на время съемки раствор из кюветы с образцом; запускается система регистрации (открываются инкрементный канал и зарядово-цифровой преобразователь па время, определяемое длительностью пулевого кадра), и снимается дифракционная картипа мышцы в состоянии покоя. После этого подается команда на электростимуляцию мышцы и начипается аналогичиая нулевому кадру регистрация последовательных дифракционных кадров в соответствии с программой фильма. По окончании последнего кадра детектор отключается, перекрывается пучок СИ, раствор подается в кювету. Если задан режим двух экспериментов, то первая кювета с образцом выводится из пучка, а на ее место вводится вторая кювета, и дается команда на очередной цикл слеаующего эксперимента. Предусмотрены возможности управления



Рис. 5.9. Объемная гистограмма дифракционного фильма изометричсского сокращения мышцы. Меридиопальное направление.

узлом образца для изменения режимов сокращения мышцы с помощью релейного регистра, а также реализована возможность парпого стимулироващия мышцы во время эксперимента.

Сервисные программы позволяют наблюдать результаты измерений на экране цветиого дисплея в интервалах между

циклами; объемные гистограммы фильма и кривые текущего цикла одновремещио с соответствующами кривыми первой записи чередуются па экране дисплея. Объемная гистограмма фильма и кривые позволяют оператору судить о качестве проводимого эксперимента, следить за физиологическим состоянием мышцы в процессе опыта и в случае необходимости вмешиваться в ход эксперимента для корректировки его условий. По окончанию измерений фильм может быть обработан.

Предварательная обработка результатов состоит в нахождонии интегральных питепсивностей рефлексов с вычитанием фона. Фоновая линия вычисляется на основе заданных границ обрабатываемого рефлекса методом наименьших квадратов. График интеленностей рефлексов по кадрам выводится на цветной дисплей и в виде гистограмм на цифропечать. Поведение интепсивностей рефлексов также можно паблюдать визуально на дветпом дисплее на объемных гистограммах фильма (рис. 5.9).

Максимальное количество кадров при конфигурации, показанной в блок-схеме (рис. 5.10) с 256 каналами в кадре и в режиме съемки трех типов параметров кривых, составляет 50. Программное обеспечение системы занимает около 5 К 16-разрядных слов памяти.

Математическая обработка экспериментальных данных. Дифракциопный фильм — результат эксперимента по методаке дифракциопного кппо — содержият пабор (до 70 репятевограмм (кадров)) состояний структуры объекта. Каждый кадр представляет собой целочисленный массив длиной в 256 элементов. Помимо дифракционных кадров фильм содержит информацию о временном изменении трех параметров объекта (до 16 массивов по 70 элементов для каждого параметра). Кадр — одномериал дифракционная картина, соответствующая либо мевальному, либо мердиональскому направлению дифракции, — представляет зависимость интенсивности рассеянного излучения от угла вдоль направления дифракционная картина мышцы состоит из серии дискусенных дифракционная картина мышцы состоит из серии дискусенных дифракционных максимумов (рефлексов)



Рис. 5.10. Блок-схема математической обработки дифракционных фильмов.

на непрерывном фоне: каждый рефлекс характерпзуется угловым подожением, ширипой п питегральной интенсивностью.

Как и во всех рептгеноструктурных экспериментах, первостепенной задачей в исследованиях по методике дифракционного кипо является получение неискажениой дифракционной информашпи об паучаемом объекте. Результаты рептгеновских измерспий полвержены влиянию целого ряда аппаратных и методических погрешностей, причем качественно иные особенности исследования с высоким временным разрешением, а именно использование СИ и живущего во время эксперимента объекта, вносят в них дополнительные погрешности. Последние обусловливаются такими факторами, как падение интенсивности СИ, смещение положения пучка СИ, изменение поглощения в объекте при функционпровании во время измерений и т. д. Исправление экспериментальных погрешностей в дифракционной информации входит в задачу математической обработки дифракционных фильмов и составляет ее начальный этап (см. рис. 5.10). Второй этап математической обработки заключается в получении знфракционной пиформации из исправленных экспериментальных паппых. Это - выделение рефлексов из фона, определение нараметров рефлексов с учетом фона и их ошибок, получение в графическом виде зависимостей параметров рефлексов и параметров мыпщы от времени. Для решения перечисленных задач были разработаны алгоритмы, которые легли в основу комплекта программ для обработки дифракционных фильмов.

Задача компенсации экспериментальных погрешностей проводится с помощью процедур нормировки, центровки, свортки кадра и калибровки. Программа, реализующая порипровку калров, призвана скомпенсировать неравные экспозиции кадров фильма. Для определения поправок на экспозиции кадров в эксперименте предусмотрена регистрация предварительно ослабленного первичного пучка, так что каждый кадр помимо дифракциоипых максимумов содержит еще и максимум, соответствующий первичному пучку, прошедшему через объект. Для того чтобы де виосить дополнительную ошибку при нормировке кадров, интегральная питенсивность (1-2%).

Цептровка кадров компенспрует смещение центра кадра во время съемки фильма и заключается в поиске точки, относптельно которой кадр напболее симметричен. Сумипрование симметричных правой и левой частей кадра (свертка кадра) применяется для улучшения статистической точности интенсивностей. Целью калибровки является введение поправок на перавпомерную шприну регистрирующих каналов детектора. Калибровка проводится на основе предварительно сиятого калибровочного кадра — распределения интенсивности по каналам при равномерной засветке рабочего поля детектора.

Математическое обеспечение методики предусматривает два способа выделения рефлекса из фона: подбор модельной кривой для лишии фона и подбор модельной кривой для всего кадра. При моделировании допускается, что кадр состоит из монотовно спадающего фона и разделенных пиков интенсивности. Модельная кривая для всего кадра, т. е. для распределения интенсивности по капалам, подбирается в виде зависимости

$$y_{j}^{\tau} = \sum_{k=1}^{2} \alpha_{k} e^{-\beta_{k} x_{j}} + \sum_{i=1}^{N} A_{i} e^{-\frac{(x_{j} - M_{i})^{2}}{2\sigma_{i}^{2}}} \operatorname{npn} x \ge 0, \quad (5.1)$$

где y_j^T — значение интенсивности в капале с координатой x_i , отсчитываемой от центра кадра; N — число пиков на рассматрвваемом участке экспериментальной кривой. Две экспоненты введены для того, чтобы учесть фон, имеющий сначала быстрый, а затем медленный спад. Каждая гауссова функция во второй сумме аппроксимирует один рефлекс. Параметры эксполент (α_i , α_2 , β_1 , β_2) и гауссовых функций (A_i , M_i , σ_i) определяются так, чтобы минимизировать величину

$$Q = \sum_{j} \frac{\left(y_{j}^{\circ} - y_{j}^{\mathsf{T}}\right)}{y_{j}^{\mathsf{T}}},$$

где y_j^3 — экспериментально измеренная питенсивность в *j*-м капале с учетом ошибок опыта. Такая схема обработки требует определения приближенных значений параметров модели. Для этого используется часть кадра (либо суммарного, либо нулевого капра), не содержащая пики, и по ней определяются параметры, описывающие фон, а после вычитания из экспериментальной кривой фона определяются по методу наименьших квадратов параметры каждого пика. При этом ввиду того, что пики разделены, определение параметров каждого пика может производиться независимо от остальных, причем после логарифмирования модельной и экспериментальной зависимостей, задача об опредслении параметров одного пика становится липейцой. Далее параметры модельной крпвой уточияются при помощи стандартпой программы минимизации [50]. В процессе обработки последовательных кадров уточненные параметры модели для текущего кадра передаются в качестве пачальных для следующего. После построения для каждого кадра модельной кривой вычисляются параметры рефлексов. В случае моделирования линии фопа в качестве функционала используется первое слагаемое в выражении (5.1), а иптенсивности рефлексов определяются вычитанием из экспериментальной кривой теоретического фона.

Опыт обработки дифракционных фильмов, полученных на портияжной мышце лягушки, показая, что моделирование всей дифракционной картины по описанной схеме хорошо работает в случае меридиональной дифракции Гото объясплется тем, что меридиональные картины дифракции содержат хорошо разрешенные пики интенсивности (порядки периода 429 Å). Экваториальные же картины дифракции помимо основных силыых рефлекссов (10 и 11) имеют слабме, плохо разрешающиеся рефлексы (С-рефлекс, 20, 21 и г. д.). Шики интенсивлости, соответствующие этим рефлексам, образуют в области основных рефлексов как бы дополнительный фон, учет которого приводит к более гочному определению параметров обрабатываемых рефлексов. Учет «дополнительного фона» (между рефлексами 10 и 11 и за рефлексом 11) производится путем добавления к функционалу

(5.1) СУММЫ
$$\sum_{l=1}^{\infty} (a_{0l} + a_{1l}x_j + a_{2l}x_j^2).$$

Необходимо обратить внимапие на то, что при определении начальных значений параметров функционала параметры «медленной» экспопенты должны быть пайдены по фоновой части картины, не содержащей дифракционных пиков.

Математическое обеспечение содержит программу, позволяющую выводить на графопостроитель трехмерную картныу дифракцип, которая представляет собой пзображение набора дифракционных картиц, соответствующих последовательным стациям процесса п сдвипутых отпосительно друг друга таким образом, что создается эффект объемности. Трехмерная картипа дифракцип отражает зависимость интенсивности рассеяния от угла рассеяния п от времени с момента запуска процесса. Трехмернаят картана дифракции позволяет наглядно продемонстрировать иннаиких яменения дифоакционной информации (см. рис. 5.9).

Все программы математического обеспечения методики дифракциовного кино описаны на языке ФОРТРАН и поставлены на ЭВМ ЕС-1040 ВЦ ИЯФ СО АН СССР.

5.2. СКОРОСТНОЙ ДИФРАКТОМЕТР СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НАКОПИТЕЛЯ ВЭПП-3

Первый вариант дифрактометра (рис. 5.11) был установлен в зале накопителя позитронов п электропов ВЭПП-3 и запущен в работу в 1979 г. [51].

Мопохроматизация пучка СИ осуществлялась плоским кристалл-монохроматором. Использование двухкристальной системы в зале ВЭШІІ-3 певозможно, так как из конструктивных соображений была выбрана горизонтальная схема монохроматизации. В такой схеме ось монохроматора расположена вертикалью. При этой геометрии в силу высокой степени поляризации СИ интенсивность отработанного пучка СИ на 30-60 % мевыше интенсивности, которая могла бы быть в мопохроматиярованном пучке при вертикальной схеме.

Для коллимации первичного и монохроматизированного пучков использовались специально разработанные для экспериментов с СИ настранаемые щеля из тантала. Первая щель устаРис. 5.11. Общая схема дифрактометра для исследования быстрых структурных изменений с помощью синхротронного излучения.

J — накопитель ВЗЛП-5; 2 — вачумный кнаях сикуротопного налучения; 3 — магнитая цель, 6 — конскроматору правленая цель, 6 — конскроматору правлетая цель, 6 — конскроматору правлеканный на поворотной раке; 5 — голнокенный на поворотной раке; 5 — голноканный на поворотной раке; 5 — понноканный на поворотной раке; 5 — поннорож, применя и праводатору в обращение и праводатору в о



навливалась перед монохроматором, а две другие — на массивной раме, вращающейся вокруг монохроматора, соосно с ним.

Слабая расходимость пучка СИ (10⁻⁴ рад), а также малый вертикальный размер электронного стусяка в точке палучения накопитсятя BЭПП-3 (0,1 мм) позволили реализовать на дифрактометре бесщелевую схему коллимации. В этом случае на всем пути от точки излучения до монохроматора и далее до образца пучок СИ горизонтальныхи пелями не коллихипровался. Такая схема использовалась и экспериментах, где предъявлялись жестики требования к фоловыми, и рассепванием на щелях препсбречь было невозможню.

Сразу после коллиматора на поворотной раме устанавливался гоняометр ГУР-4. Дифрагированное от устаповленного па нем образца излучение регистрировалось в горизонталькой или вертикальной плоскости в завлісности от расположения гонцометра.

Регистрация осуществлялась однокоординатими детектором [52], представляющим собой пропорциональную камеру с распределенным в виде липин задержки катодом. Разрешение детектора 0,1 мм, длина входного окна 100 мм, максимальная частотная загрузка 250 кГц. Сигналы с разных концов катода по двум канамам постумали в формпрующие усилители, дискримипаторы, а затем па иходн СТАРТ и СТОП блока преобразования ремя — амплитуда (ТА-копвертор). Величина амплитуды импульса на выходе ТА-копвертора соответствовала координате гамма-квалта, зарегистрированного детектором. Елоком авалогового преобразования осуществлялюсь намерение амплитуды импульса, выдаваемого ТА-копвертором. Результат измерения считывался в информационный регистр КАМАК-крейт-контроллера, а затем занисывался в буферное заномитающее устойство.

5.3. СКОРОСТНОЙ ДИФРАКТОМЕТР СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НАКОПИТЕЛЯ ВЭПП-4

В марте 1983 г. на ВЭПП-4 был запущен в работу вариант дафрактометра, учитывающий снецифику работы на новом накомителе [53]. Вся конструкция дифрактометра крешится к двум



Рис. 5.12. Схема дифрактометра СИ на ВЭПП-4. – несущая банка; 2. – щели, 3. – танимотра; 4. – денектор: 5. – костировочный мехашизы; 6. – наная. СШ; 7. – входная щели; 6. – монохроматор; 9. – костировочный мотор; 10. – оптическая снаямя.

массивным несущим балкам (рпс. 5.12), установленным строго параллельно пучку СИ. Сами несущие балки закреплены на потолке бункера, построенного сиециально для работ с СИ. Дифрактометр располагается на расстоянии 15 м от точки излучения. От накопителя до дафрактометра пучок СИ проходия по вакуумному капалу.

В отличие от предыдущей модели дифрактометра на ВЭПП-4 реализована вертикальная схема монохроматизации (при этом ось монохроматора находится в горизонтальном положении; см. рис. 5.12). Такая геометрия дифрактометра позволяет более эффективно использовать поляризацию СИ.

Монохроматор. Схема монохроматора изображена на рис. 5.13. Вращение кристалл-монохроматора осуществляется шаговым двигателем через систоку последовательно соединенных передач. Передаточное отпошение всех звеньев — встроенного редуктора шагового двигателя, редуктора монохроматора и червячной передачи — равно 14210,5, поэтому один шаг двигателя соответствует повороту кристалл-монохроматора на 0,38. Степень монохроматизации $\Delta/\lambda = 10^{-2} - 10^{-4}$ и определяется степеныо совершенства используемого кристалла. Кристалл-монохроматоры изтотовлялись из германия, иктора на фторида лития, пиРис. 5.13. Схема монохроматора. 1 — шаговый динчитовь; $3 \rightarrow$ редуктор; 5 — черяячизая ось; $4 \rightarrow$ прижимиюе устройство черяячной осн; $5 \rightarrow$ посадочное место кристалиа; $6 \rightarrow$ моноблочный кристаляльногохроматор; $7 \rightarrow$ траентория пучна Сай; $8 \rightarrow$ крыника редуктора.

ролитического графита. Кристаллы вырезаются в виде плоских шайб или в форме «бабочки».

Настройка на нужную длипу волны производится автоматически с помощью ЭВМ по специальной программе. Для этого каждое дискретное поло-



жение монохроматора заранее калибруется по реперным длинам воли, соотнетствующим К-краям введенных в пучок СИ элементов. Элементък подбирались с таким расчетом, чтобы их К-края находились в рабочей области предстоящего эксперимента. Напримор, при работе в интервале длин воли 1,5-2 Å калибровку проводили с помощью фильтров из меди и никеля, кобальта и железа, введенных в пучок СИ. После сканирования по всему интервалу длин воли в ЭВМ запосилась таблица соответствия угол поворота — реперная длина волны, на которой паблюдался К-край элемента. Длины воли, соответствующие промежуточным углам поворота монохроматора, рассчитывались на ЭВМ и запосились в калиборовсично таблици.

Для корректной работы на СИ необходимо учитывать, что при настройке, папрямер λ_0 от креминевого монохроматора с плоскостью (220), огражаются также выситие гармонный $\lambda_0/2$ от (440), $\lambda_0/3$ от (660) и г. д. Чтобы уменьшить ях вляние, приивмаянсь следующие меры: 1) кристаялы для мопохроматоров вырезались по плоскостям, в которых происходит погасание кратных гармоник, папример плоскость (111) германия и кремпия; 2) пряменялись бильтры поглощения на узкую область для подавления высших гармоник; 3) подбиралась оптимальная энергия накопителя; 4) использовалось зеркало полного влешиего отражения.

Кристаля-монохроматор устанавливался в вакуумную камеру. Это было сделано по следующим соображениям: 1) для умевышения ослабления лучка при работе в длинноволивой областя; 2) для предотвращения образования оксидных пленок на поверхности кристалла и коррозии элемевтов конструкции монохроматора, возникающих при облучения СИ в атмосфере; 3) для уменьшения радлационного фопа, обусловленного рассенванием цучка СИ на воздухе в камере монохроматора. Вращение от шагового двигателя к кристаллу передавалось через прецизионную объ шунжера, закрепленного на стенке вакуумной камеры. Такое решение для передачи вращения в вакуум обеспечивает небходамую точность при вращении кристалла, а также позноялет подперживать вакуум в камере или наполнять ее гелием.

При повороте плоского кристалла вокруг горизоптальной оси дифратированный путок отклопяется в вертикальной плоскости. Для слежения за дифрагированным путком коллимационная система и гоппометр установлены на раме, вращающейся соосно с мовохроматором по схеме ($\theta - 2\theta$) (см. рис. 5.12). Такая схема позволяет за несколько минут осуществлять юстировку всего дифрактометра при изменении длицы волны.

Коллимационная система. Коллиматор состоит из двух вакуумпых щелей, имеющих две степени свободы перемещения во взаимно перпендикулярных направлениях и степень вращения вокруг оси пучна СИ.

Вращение вокруг осл пучка передается через специальную маглитную вакуумную передачу (рис. 5.14). Угол наклона щели может меняться с точностью до 20 угловых секунд. Вращая одну щель относительно другой, можно добиться их параллельпости.

Первоначально юстировка щели производится при визуальном контроле через свинцовое окно (рис. 5.15) положения пучка по люмиюфору, нанесенному на щель. Точная юстировка щели осуществляется по показаниям детектора, находящегося на пути пучка.

Гоннометр. Для установки детектора и образца под пужным углом и пучку СИ использован вертинальный гоннометр РW-1050/81 фирмы Phillips (Нядерланды). Вертикальная схема регистрации рентгенограмм была выбрана по следующим причинам: 1) при такой схоке плоскость пучка после монохроматора параллельна оси гоннометра, что позволяет использовать в дифракционном эксперимевте всю апертуру пучка; 2) оптимально используется поляризация пучка СИ.

Говнометр устававлявался на юстировочпом столе (рис. 5.16). Вертикальными перемещениями и вращениями вокруг вертикалькой оси осуществляется уставовка его параллельно пучку СИ таким образом, чтобы оп проходил через горизонтальную ось гоннометра.

Система регистрации с использованием пропорционального детектора. Как и па дифрактометре СИ ВЭПП-3 (54), па новом дифрактометре установлен координатно-чувствительный детектор [52].

Для определения координаты рассеянного у-кванта пспользован быстродействующий памеритель временных интервалов (ИВИ) [54]. Временпое разрешение ИВИ 400 пс, максимальная частотвая загрузка 500 кГц.

Координата гамма-кванта в вяде нефрового кода записивается в универсальное запоминающее устройство (УЗУ) [55]. Для увеляченяя скорости записы виформации используется режим работы передачи данных по передней панели из ИВИ в УЗУ, минуя матистраль КАМАК.



Рис. 5.17. Схема, поясняющая адгорнты записи впформации от однокоордиисти натного детектера.

ИВИ — намеритель временных интервалов; ЗУ — запоминающее устройство; Т таймер. Емкости одвого УЗУ достаточно для записи 16 ренитенограмми, зарегистрированных детектором. Для каждой ренитенограммы в УЗУ отведена своя зона — «страница». Нереключение адреса зоны для запися повой рентгенограммы осуществляется по специальной программе, записанной в крейт-контроллере КАМАК. В таком режиме «страницы» можпо «перелистывать» через каждую мпллисекуяду с мертвым временем между странитами, реявных 2 мис.

Как правило, 16 рентгепограмм педостаточно для получения полной картины о динамике исследуемого процесса. Поэтому предусмотрена возможность последовательной работы с несколькими УЗУ — до десяти. При этом все УЗУ соединяются параллелью с ИВИ по передней панели (рис. 5.17).

Нормировка и калибровка пропорционального детектора и састемы регистрации. При съемке одной рептгенограммы фотоны, попадающие в детектор, рептстрируются, а информация о координате заносится в память УЗУ. При прохождении всего тракта измерений сигнал с однокоординатного детектора ослабляется и частично терлется. Причем сигналы, приходящие от разных участков детектора, искажаются по-разному, что отрицательно сказывается па качестве ренитенограмм. Формально эти исказмения можно описать, вверд козффициент дифференциальной пелинейпости регистрирующей системы N(i), где i — помер канала. Тогда распределение регистрируемой интенсивности $I_n(i)$ можно записать в иде

$$I_R(i) = I_D(i) \cdot N(i), \qquad (5.2)$$

где $I_D(i)$ — дифрагированное излучение. Другими словами, дифференциальную нелинейность можно рассматривать как козффициент эффективности счета каждого капала системы регистрация.

Дифференциальная нелпиейность представляет собой функцию, случайно осцилляции, достигающей 1-5%. Для учета дифференциальной пелянейности системы регистрации предложена методика, позволяющая уменьшить искажения регистрируемых регитевограмы за счет выделения функции $I_o(i)$ из $I_n(i)$. В этой методике используется объект с известным распределением интевствности *I*. Например, для паотопа это распределением итула не зависит; поэтому линейный однокоордипатый детектор должен зарегистрировать от него следующее распределение интевствности от имеейа канала (оце. 5.18):

$$I_{I}(i) \sim k(E) \frac{Ia}{4\pi (r_{o}/\cos\left((512-i)\cdot\delta\theta\right))^{2}} \cdot \frac{lh}{1024},$$

гие б0 — дискретность регистрации k(E) — эффективность регистрации фотонов энергии $E; I_a$ — активность изотопа; r_o — расстояние от детектора до изотопа; l — длипа детектора; θ — угол



цадения излучения на детектор ($\theta = |512 - i|\delta\theta$); h — ширина области регистрации детектора.

При значительном удалении пвотопа от детектора ($r_0 = 2$ м) θ изменяются в пределах ±1,43°, а максимальное различие иптенсивности наблюдается на краю и в центре детектора, что соответствуют 1-му (пли 1024-му) и 512-му каналам системы регнограции, при этом отношение интенсивности в указанных каналах составляют

$$\frac{I_I(512)}{I_I(I)} = 1,0006.$$

Таким образом, с точностью до 0,1 % можно считать, что при удалении изотопа на расстояние 2 м распределение интенсивности $I_I(i) =$ соиз, поэтому из формулы (5.2) следует, что распредоление интенсивности от изотопа можно описать следующим образом: $I_R(i) = kN(i)$.

После определения коэффициента дифференциальной нелипойности N(i) с помощью изотона можно определить $I_p(i)$ из формулы (5.2), т. с. выполнить процедуру пормировки:

$$I_D(i) = \frac{I_R(i)}{N(i)}.$$

Величипа N(i) может быть определена с точностью до 0,1 %, ссли с помощью изотопа удастся набрать не менее 10⁶ импульсов и каждый кнапа, поэтому и зависплють $I_D(i)$ может быть восстановлена из $I_n(i)$ с такой же точностью. Пример восстаповления $I_n(i)$ с учетом дифференциальной нелинейности приведен па рис. 5.19.

Калибровка. Интервал углов регистрации Δ0, захватываемых детектором, зависит от того, на какое расстояние од удален от исследуемого образца. При использовании однокоординатного детектора [52], установленного на гопиометре типа Phillips-PW-1051/81, диапазон регистрации Δ0 может меняться от 15 до 40°, если детектор находится от образца на расстоянии 400 и 150 мм соответственно (рис. 5.20).

Установка детектора па повом расстоянии от образца приводит к изменснию как углового разрещения регистрирующей систомы δθ ~ Δ0/1024, так и положения θ₀ детектора отпосительно первичного путка (см. рис. 5.20).





Рис. 5.19. Процедура пормы- Рис. 5.20. Схема регистрации однокоордыровки детектора.

1 — распределение интенсивности от изотопа, зарегистрированное однокоординатным детектором; 2 - то же, после нормировки,

патным детектором.

1, 2 - два положения детектора на разном расстоянни; 3 — апнаратурный ноль гоннометра; 4 — детектор; 5 — направление сканирования при калибровке; 0, — зарегистрированный ноль гоннометра.

Для количественной обработки рентгепограмм необходимо знать абсолютное положение регистрирующей области детектора и каждого его канала относительно первичного пучка. Для этого сразу после юстировки дифрактометра выполниется грапунровка детектора. В процессе градуировки осуществляется сканирование детектора таким образом, что нучок СИ, ослабленный поглощающими фильтрами, последовательно попадает в различные участки детектора, и после определения его капала составляется таблица соответствия (градуировка): капал іугол гониометра 0. В большинстве случаев шаг сканирования по углу равен 1°, что соответствует изменению на 25-55 капалов в градунровочной таблице:

Угол поворота N 219 271 322 57 112 166 372 421 Канал регистрации І 469 516

Поэтому в таблицу запосятся не все 1024 канала, а только те, чьи θ соответствуют изменению угла на 1°: $i \leftrightarrow (\theta_0 + N)$, гле N — шаг сканирования.

В процессе градуировки определяется также положение детектора относительно первичного пучка 00. В общем случае оно отлично от нуля, так как на гоннометре Phillips-PW-1051/81 $\theta_0 = 0$ только в том случае, когда первичный нучок проходит основанию гониометра. - Как параллельно видно выше πз рис. 5.20, в используемой схеме дифрактометра требование нараллельности пучка основанию гониометра в общем случае невыполнимо.

При обработке рептгенограмм абсолютное значение угла дифракции 0, например положение рефлекса, определяется следующим образом: после нахождения помера канала, соответствующего максимуму рефлекса imax, из калибровочной таблины полбирается номер канала i_0 , удовлетворяющий условию $(i_0 - i_{max}) = \min$, а угол дифракции определяется из формулы

$$\theta = \theta_{\rm g} - \theta_0 + \theta_{10} + (i_0 - i_{\rm max}) \cdot \delta\theta,$$

где θ_{σ} — ноказание на шкале гониометра во время регистрации репитенограммы; θ_{0} — показание на шкале гониометра, соответствующее N = 0, зафиксированное во время сиятия градуировки; θ_{10} — значение, изятое из градуированной таблицы, соответствующее найденному i_{0} ; i_{max} — канал, соответствующий максмыуму рефлекса; $\delta\theta$ — угловое разрешение детектора в области каналов от N до (N+1). После регистрации градуировка проверяется с помощью тестовых образцов — по определению межилоскостных расстояний и сравнению их с литературными данными.

Система регистрации с использованием детектора на основе прибора с зарядовой связью. Для исследовация структурных изменений. происходящих в монокристаллических образлах. предпочтительнее использовать петекторы на основе приборов с зарядовой связью (ПЗС-детекторы [56]). По сравнению с однокоординатным детектором, работающим в пропорциональном режиме [52], ПЗС-детектор обладает рядом препмуществ. Во-первых, у него нет ограничений на скорость счета, в то время как пропоршионального детектора максимальная скорость счета 250 кГц. Это обусловлено тем, что увеличение потока дифрагированного излучения приводит к росту величины заряда, пакапливающегося в ячейках ПЗС-петектора по мере облучения фотонами. Во-вторых. ПСЗ-детектор обладает лучшим пространственным разрешением — 15 мкм. В-третьих, для ПЗС-детектора времи регистрации одной рентгенограммы в принципе может быть уменьшено по нескольких наносекуна.

Но в то же время ПСЗ-детектор обладает рядом недостатков: у него мала область регистрации одного канала — 10×10 мкм, мала эффективность (5%) для излучения медной рептгеновской трубки, а время считывания информации с детектора и запесения в память ЭВМ велико — 300 мс.

Электропика управления ПЗС-детектором описана в работе [56]. В дополнение к ней использовался аналого-цифровой преобразователь АЦП-101 [57], переводящий информацию о распределении интенсивности в рефлексе из аналоговой формы в цифровую.

Автоматизация управления дифрактометром сбора и обработки информации. Для автоматизации работ на дифрактометрах и первичной обработки полученной информации использовались ЭВМ ОДРА-1305, ОДРА-1325 и ОДРЕНОК. Для этих ЭВМ в Ипституте ядерпой физики СО АН СССР разработаны система слязи с исследовательскими установками, операционная система [58] и пабор программ для работы с магнитофонами, наконителями на магнитиых барабалах и дисках, устройствами вывода информации.



Для пепосредствепного управления работой дифрактомстра использовались следующие модули, изготовленные в стандарте КАМАК [59-61]:

УШД-2. Блок управления шаговыми двигателями. Применяется для вращения монохроматора, детектора и образца на гоннометре и для других целей. Р-2. Блок ручного привода для управления шаговыми

двигателями.

КАС-32Г. Коммутатор 32-канальный, гпрконный.

ЦДР-2. Блок управления цветным дисплеем.

АЦП-101. Аналогово-цифровой преобразователь.

ЦАП-16×16. Цифроаналоговый преобразователь.

Программы для управления работой этих блоков составлялись с учетом специфики работы на дифрактомстре.

Управление работой основных узлов дифрактометра во время его юстировки и настройки па требуемую длину волны осуществляется с алфавитио-цифрового дисилея. Вся информация о работе узлов выводится для удобства и оперативного контроля



Рис. 5.22. Блок-схема программы КИНО.

на цветной дисплей. При пеобходимости оператор может остаповить программу и внести в ее работу пеобходимые изменения.

Для регистрации рентгенограмм после прихода команды от ЭВМ в работу запускается система регистрации.

Управление процессом сбора информации и системой регистрации невозможно осуществить пепосредственно от ЭВМ из-за ее значительного удаления (до 100 м) от экспериментальной установки, так как передача команд и массивов пиформации на такие расстояния занимает время до 300 мс. Чтобы уменьшить время перодачи и тем самым улучшить быстродействие установки, написапы программы, осуществляющие обмен информацией и передачу команд блокам КАМАК влутри крейта, т. е. в автопомиом режимие без обращения к ЭВМ.

Блок-схема такой программы представлена на рис. 5.21. В впде микрокоманд она записывается в контроллер СС-25 [57] и запускается в работу по внешнему запуску либо по команде от ЭВМ. Выход из автополного режима осуществляется при заполнении всех страниц УЗУ.

Согласование работы системы регистрации, вывода информации на монитор, запись ее на магнитные носители выполняет программа-диспетчер КИНО. Блок-эхема этой программы представлена на рис. 5.22. Для дальнейшей количественной обработки рентгенограмм использовался пакет программ, написанных для ЭВМ ОДРА-1305.

5.4. ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ЭФФЕКТА АНОМАЛЬНОГО РАССЕЯНИЯ В РЕНТГЕНОСТРУКТУРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЯХ

При исследовании структуры вещества, состоящего из одинаковых атомов, вопрос о возможном изменении фазы при рассеянии па кристаллической решетке не кмеет реального значения. Это изменение может влиять на фазу результирующей рассеяний водны, по не на ее интепсивность. Одпако положение меняется, если элементариая ячейка состои большо чем из одного рода атомов. Для развых атомов изменение фазы при рассеянии может быть различным, это вносит в структурный множитель разности фаз, отличающиеся от тех, которые определяются положением атомов в элементариой ячейке. Такие изменения фаз можно учесть, если принять, что функция атомного рассеяния *f* имеет комплексный вид f = f' + if'', так как в комплексиую амплитуду всегда входит фазовый множитель.

$$f' + if'' = |f|(\cos s + i \sin s) = |f|e^{is}$$

где

$$\operatorname{tg} s = f''/f |\mathbf{n}| |f| = (f'^2 + f'^2)^{1/2}$$

определяют соответственно действительный амплитудный множитель, равный модулю f, и фазовый множитель exp(is).

Традяционно в рентгеноструктурпом апализе считалось, что структурпые множители симметричных рефлексов с индексами Кы и Ак! равны: Г(Kk!) = F(kk!) (закоп Фриделя). Это означает, что и интенсивности отражений с такими индексами должны быть равны. Проведение элементарного апализа структурных факторов с учетом того, что различные атомы в структуре нецевтросимметричного кристалла рассенвают рентгеновские дучи с разными измененнями фазы, может доказать ошибочность закона Фриделя. Это показапо на примере кристалла ZnS. В пем плоскости цинка и серы чередуются, как показано на рис. 5.23, параллельно грани (111), а расстояния между бликайщими па-



рами плоскости Zn и S составляют четверть всего расстояния между плоскостями (111). Если при рассеянии па атомах серы и цинка получаются соответствению изменения фаз s1 п s2, то разность фаз между лучами B и A будет равна s0+s2-s1, где s0 — разность фаз, соответствующая расстоянию между плоскостями Zn и S. С противоположной сторо-

Рис. 5.23. Иллюстрация отражения пецентросимметричного кристалла от противоноложных граней.

ны тех же плоскостей разпость фаз между лучами D и C будет равна s0 + s1 - s2. Используя две длины волпы 1,273 и 1,285 Å, близкие к К-краю поглощения цинка 1,285 Å, в работе [62] продемонстрирована зависимость интенсивностей рефлексов (111) и (-1-1-1) от фазы отражения.

Несмотря на то что нарушение закона Фриделя было продемонстрировано еще в 1930 г., различие в интенсивностях I(H)и I(-H) не использовалось в целях анализа кристаллической структуры до тех пор, пока Брефут [63—65] пе показал, что такое различие в интенсивностях можно использовать для разрешения хорошо известной двойной пеоднозначиости при определешии фазы методом однократного изоморфного замещения. Разность ΔI интенсивностей I(H) и I(-H) известна как развоть Бейфута. Вноследствии были разработашы методы, развивающие зту идею [66—68].

5.4.1. Дисперсионные поправки к атомному фактору рассеяния

Для многих случаев аномальные добавки описываются соотношением Крамера — Кропигса

$$\begin{split} f'(\omega) &= \sum_{i} \int \frac{\omega'^{2} \left(dg/d\omega' \right)_{i} d\omega'}{\omega^{2} - \omega'^{2}}; \\ f''(\omega) &= \frac{1}{2} \pi \omega \sum \left(dg/d\omega \right)_{i}, \end{split}$$

где (dg/dω); — плотность осцилляторов типа i; суммирование проводится по всем краям поглоцения. Плотность осциллятора связана с атомным коэффициентом поглощения первого осциллятора соотношением

$$\left(\frac{dg}{d\omega}\right)_{i} = \frac{mc}{2\pi^{2}c^{2}} \ \mu(\omega).$$

В пепосредственной близости от K-краев поглощения f' п f''наиболее сально наменяются в зависимости от энергии: f'' скачкообразпо возрастает, f' — уменьшается, принимая отрицательные значения (рис. 5.24).

Теоретический расчет аномальных добавок к атомному фактору расселния для характеристического излучения ренттековских трубск приведене в работах [70-75]. Эти данные в настояцее время общепризнаны и широко используются кристаялографами при определении структур. Нет инкаких сомнений в том, что теория аномальных добавок верша и ее можно использовать для всех длип волн, но в непосредственной близости от К-краев поглощения указанная теория не работает, так как в лей не учтены эффекты, имеющие место при резонавсном возбуждении орбятальных электронов. Экспериментальные работы 176-801 посьящены исследованиям именьо в этом узком диана-



Рис. 5.24. Зависимость f' и f" от энергии вблизи К-края поглощения Ge аморфного силава GeSe [69].

зоне плин волп. В частности, в работе [76] методом энергодисперсионной дифрактометрии измерены f' и f" галлия в области его К-края поглошения. Метопом рептгеновской иптерферометрии определены аномальные добавки К-края поглощения области никсля [77, 78]. Значения добавок для меди у К-края поглощения опубликованы в работе [79]. Во всех перечисленных работах наблюдается определенное, по незначительное отклонение от теории. Максимальные значения для

f' п f" наблюдались у галлия. Они равны —10 и 6е соответственно. К настоящему времени выполнено несколько экспериментов с использованием дляи воли, близких к L-краям поглощения [80]. Для вольфрама измерено f', равнос —10,4е при длине волиы, отличающейся на 6 % от L₃-края поглощения.

5.4.2. Измерение аномального структурного фактора

Метод заключается в измерении питенсивностей рентгеновских рефлексов от кристаллов с известяой структурой и в сраннении затем по методу наяменьших квадратов экопериментального структурного фактора с теоретическим. Во время расчетов такие параметры структуры, как положение атомов, заселенность и температурный фактор, предполагаются постоянными, а варьпруют f', f' и размерный фактор. Таким образом, структурный фактор является функцией трех переменция, поэтому для их нахождения необходямо решить систсему на трех уравней.

Регистрация одного рефлекса Брэгга даст одно уравнение. В принципе достаточно провести регистрацию только трех рефлексов, по на практике для получения более надежного результата проводят гораздо больше измерений. Наиболее точное решение получается в том случае, когда удается подобрать систему рефлексов, в которой одна их часть отражается от плоскостей с малой копцентрацией тяжелых атомов и дает поэтому пуловой сдвиг фазы, другая — от плоскостей с высокой копцентрацией тяжелых атомов и дает поэтому сдвиг фазы на 180°, и третья — от плоскостей, дающих сдвиг фазы, близкий к 90°.





Рис. 5.25. Поведение аномальных компонент в области К-края поглощения в зависимости от приведенной илины волны.

Рис. 5.26. Поведение f' и f" в области L3-края поглощения цезия. Штрих — теория, линия — эксперимент.

Эти три дополнительные условия обеспечивают независимое и точное определение масштабных множителей f' п f".

Использование эффекта аномального рассеяния можно проимлюстрировать на примере дифракционного эксперимента по уточпенню структуры виннокислого церия [81]. В этом эксперименто пэмерялась интенсивность дифракционных рефлексов в зависимости от длины волны. Длина волны задавалась фокусирующим монохроматором, разработанным в Стэнфордской лаборатории СИ.

Перед проведением собственно дифракционного эксперимента рогистрировался. спектр поглощения исследуемого вещества. После этого принималось решение, на каких длинах воли проводить измерение интепсивностей дифракционных рефлексов. На каждой выбранной длипе волны измерялась интенсивають от 16 до 19 рефлексов от кристалла виноксклого церия. Для того чтобы оценить влияние различных режимов работы накопителя на получаемые результаты, полный дикл измерений повторался черев несколько месяцев.

Точно такая же серия экспериментов проведена по определению аналогичной структуры виннокислого кобальта.

Далее, используя стандартные процедуры, применяемые в кристаялюграфии, получены структурные факторы этих соединений. В стандартной процедуре расчетоя, было учтено изменение интенсивности СИ, обусловленное ограниченным временем жизли пучка электровов в накопителе, а также то, что пучок СИ полностью поляризован. После коррекции на поглощение методом намсеньших квадагов получены вначения f' и f".

На рис. 5.25 пряведено сравнение результатов измерений f' и f", полученных разными методами: рентеновской спектроскопией, внергодисперсионной дифрактометрией, рентгеновской пи-



Рис. 5.27. Спектр поглощения и f" Рис. 5.28. Спектры простых соедидля випнокислого цезия в области пений в области L₃-края поглощения. L₃-края поглощения.

терферометрией и кристаллографическими методами. Удовлетворительное совпадение результатов измерений всеми перечисленными методами дает основание для использования любого из пах для определения i' и j".

На рис. 5.26 сравниваются теоретические и экспериментальные значения f' и f" в области энергий L3-края поглощения церия. При энергиях, близких к L2-краю поглошения. повеление аналогично, за тем исключением, что масштаб изменеция во втором случае в два раза меньше. Это связано с тем, что па энергии La-края возбуждаются четыре электрона, а La-края только два. Теория с хорошей точностью описывает масштаб изменения f' и f", но наблюдаемые в эксперименте осцилляции можно описать лишь используя идеи EXAFS-спектросконии. Поэтому расчет f' и f" из атомного коэффициента поглошения панболее достоверен. Методы EXAFS-спектроскопии в последние годы активно развиваются во многих центрах СИ, а накопленный богатый экспериментальный материал способствует лучшему пониманию процессов, происходящих вблизи краев поглощения. Действительно, сравнивая поведение f" (w) и коэффициента поглощения (рис. 5.27), легко обнаружить их идентичность, причем не только в области так называемой «белой линии», когла интенсивно возбуждаются переходы электронов в церии, по и при больших энеобиях.

Для кристаллографических исследований эффект аномального рассенния дает наибольший выштрыш при энергии налучепия, близкой к краю поглощения, но здесь б' изменяется скачкообразно, поэтому любые неточности измерения f' станут источником ошибок при определении структуры. Одна из возможных ошибок – отсутствие учета химического сдвига края поглощения. Вторая ошнбка может возникнуть, если не учитывать топкую структуру края поглощения. Это проиллострировано на рас. 5.28 в простых соединениях типа GdCls. На знергии 30 зВ от края поглощения наблюдается слабая осциляяция, в то время как для випнокислого церия та же осциляяция вмеет существенно большую амплитуду. Очевидно, учет перечисленных факторов приводит к уменьшению ошибок измерений, по до сах пор в кристаллографических исследованиях при расшифровке структуры часто используются лишь теоретические расчеты аномальных добавок [75].

5.4.3. Исследование структуры некристаллических материалов

Если у исследуемого вещества отсутствует кристаллическая рошетка, т. е. положения атомов строго не детерымнированы, то принято распределение электропной плотности в пространстве описывать с помощью функции радиального распределения G(r) [83]. Если вещество состоит из атомов нескольких сортов, тогда вводится нарщальная функция радиального распределения

$$G_{ij}(r) = 4\pi\rho_0 r(g_{ij}(r) - 1),$$

где ρ_0 — средния плотность; $g(r)_{ij} = \rho_{ij}(r)/c_i\rho_0$ — бинарные корреляциопные парциальные функции распределения; c_i — копцентрация *j*-й компоненты; $\rho_{ij}(r)$ — распределение атомов типа *j* относительно атомов *i*.

Тогда структурный фактор может быть записан следующим образом:

$$F(S) = \int G(r) \sin(Sr) dr,$$

где $S = 4\pi (\sin \theta)/\lambda; \theta$ — угол дпфракция; λ — длина волны, а парциальный структурпый фактор можно записать следуюцим образом:

$$F_{ij}(S) = \int G_{ij}(r) \sin(Sr) \, dr.$$

После введения весового фактора

$$W_{ij}(S) = c_i c_j Re \frac{f_i(S) f_j(S)}{\sum_{i=1}^n N_i f_i^2(S)}$$

парциальный структурный фактор можно переписать в следующем виде:

$$F(S) = \sum_{i} \sum_{j} W_{ij}(S) F_{ij}(S).$$

При исследовании двухкомпонентной системы, соцержащей атомы типа А и В, ее структура характеризуется тремя парци-

альными структурными факторами, соответствующими двум атомным парам, содержащим одинаковые атомы А - А. В - В. и олной паре, сопержащей различные атомы А - В. Для определения этих структурных факторов необходимо провести три независимых дифракционных эксперимента на разных длинах воли. Как правило, используют плины волн вблизи К-края элемента А. К-края элемента В и вдали от краев поглощения элементов. Выполненные эксперименты позволяют записать систему уравнений:

$$\begin{split} F(S) &= W_{AA}(S, E_1) F_{AA}(S) + W_{BB}(S, E_1) F_{BB}(S) + W_{AB}(S, E_1) F_{AB}(S), \\ F(S) &= W_{AA}(S, E_2) F_{AA}(S) + W_{BB}(S, E_2) F_{BB}(S) + W_{AB}(S, E_2) F_{AB}(S), \\ F(S) &= W_{AA}(S, E_3) F_{AA}(S) + W_{BB}(S, E_3) F_{BB}(S) + W_{AB}(S, E_3) F_{AB}(S), \\ rge \ W_{AA} &= c_A^2 f^2(S), \quad W_{BB} = c_B^2 f^2(S), \quad W_{AB} = c_A c_B f_A(S) f_B(S). \end{split}$$

Решение данной системы уравнений записывается следующим образом:

ĺ	$F_{AA}(S)$].	$c_{\rm A}^2 f_{\rm A}^2$	$c_{\mathbf{B}}^2 f_{\mathbf{B}}^2$	$2c_{A}c_{B}f_{A}f_{B} ^{-1}$	l	$F(S, E_1)$
	$F_{BB}(S)$	=	$c_{\rm A}^2 f_{\rm A}^2$	$c_{\rm B}^2 f_{\rm B}^2$	2cAcBfAfB	·	$F(S, E_2)$
	$F_{AB}(S)$		$c_A^2 f_A^2$	$c_{\rm B}^2 f_{\rm B}^2$	2cAcBfAfB		$F(S, E_3)$

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Rosenbaum G., Holmes K. C., Wits J. // Nature .- 1971 .- V. 237, N 5351 .-P. 434-437.
- 2. Вазина А. А., Герасимов В. С., Железная Л. А. // Биофизика.— 1975.— Т. 20, № 5.— С. 801—806.
- 3. Герасимов В. С., Сергиенко П. М., Савельев В. Б. и др. // ПТЭ.- 1976.-№ 3.- С. 217-219. 4. Герасимов В. И. // Кристаялография.- 1970.- Т. 15, вып. 1.- С. 156-
- 159.
- 5. Вазина А. А. // Молекуляр. биология.- 1976.- Т. 8, ч. 2.- С. 242-307.
- 5. Базния А. А. // молекуляр. ошология.— 1976.— 1. 8, Ч. 2.— С. 242—307. 6. Kratky O. Z. // Electrochem. Z.— 1954.— Ва 58. 6. 5. 49. 7. Вазина А. А., Гаржиев А. М. // Виофизика.— 1977.— № 22.— С. 551—352. 8. Вазгліясто І. J., Rosenbaum G. // J. Аррі. Стуят.— 1974.— V. 7.— Р. 117— 121.
- 9. Holmes K. C. / Endeavour.- 1974.- V. 33.- P. 60-66. 10. Beamont J. H., Grime G. W., Hart M. / J. Phys. E: Sci. Instr.- 1976.-V. 9.- P. 680-683.
- Haselgrove J. C., Faraqi A. R., Huxley H. E., Arndt U. W. // J. Phys. E.-1977.-V. 10.-P. 1035-1044.
- 12. Henbrix J., Koch M. N. J., Bordas J. // J. Appl. Cryst.- 1979.- V. 12.-P. 467-472.
- 13. Bordas J., Koch M. H. J., Clout P. N. et al. // J. Phys. E: Sci. Instr.-

- по использованию синхротронного излучения в ИНФ СО АН СССР.-Новосибирск: ИЯФ, 1981.- С. 20-30.

- 17. Вазина А. А. // Физические методы изучения молекулярных и напмолекулярных структур.- Л.: Наука. Лепингр. отд-ние, 1979.- С. 26-27.
- 18. Вазлиа А. А. // Вести. АН СССР. 1978. № 8. С. 14. 23. 19. Корисев В. Н., Герасимов В. С., Шамаров А. М., Вазниа А. А. // ПТЭ. 1984.— № 5.— C. 180—183.
- 20. Корнеев В. Н., Герасимов В. С., Матюшин А. М. и др. // Тр. VI Всесоюз. совещ, по использованию синхротропного излучения СИ-84.- Новосибпрск: ИЛФ, 1984.- С. 177-185.
- 21. Вазина А. А., Гаджиев А. М., Герасимов В. С. и др. // Там жс. С. 186-189.
- 22. Вазина А. А., Волькенштейн М. В., Гаджиев А. М. и др. // Докл. АН CCCP.- 1984.- T. 274, № 4.- C. 942-945.
- Гиманов В. П., Гоганов Д. А., Вазина А. А. и др. // Аппаратура и мето-ды рептгеновского анализа. 1978. Вып. 21. С. 134-139.
- 24. Bordas J., Munro I. H., Glaser A. M. // Nature.- 1976.- V. 262.- P. 541-545.
- 25. Вазина А. А., Герасимов В. С., Железная Л. А. я др. Скороствая дифрактометрия в рептгеновском получении структуры и динамики структурных превращений биополимеров.- Препр./Ин-т биофизики АН СССР.-Пущино, 1978.- 18 с.
- 26. Вазина А. А., Корнеев В. Н., Матющин А. М., Шамаров А. М. // Тр. IV Всесоюз. совещ. по использованию синхротронного излучения СИ-82.— Повосибирск, 1982.— С. 198—202.
- 27. Блохин М. А. Методы рептгеноспектральных псследований. М., 1959.-386 c.
- 28. Бару С. Е., Провиз Г. П., Савинов Г. А. и др. Однокоординатный детектор для быстрой мпогокадровой съемки рептгепограмм.- Препр./ИЯФ СО АН СССР.- Новосибирск, 1977.- 10 с.
- 29. Бару С. Е., Провиз Г. П., Савинов Г. А. и др. Кристаллография.- 1980.-T. 25.— C. 371—379.
- Baru S. E., Provitz G. P., Savinov G. A. et al. // Nucl. Instr. Meth.- 1978.-V. 152.- P. 209-212.

- 102.- F. 201-212.
 Paruqi A. R. // J. Phys. E: Sci. Instr.- 1975.- V. 8.- P. 633-635.
 Gabriel A. // Rev. Sci. Instr.- 1977.- V. 48.- P. 1303-1305.
 Gabriel A., Dupont Y. // Rev. Sci. Instr.- 1972.- V. 43.- P. 1600-1602.
 Gabriel A., Dupont F., Rosenbaum G. // Nucl. Instr. Meth.- 1978.- V. 152.- P. 191-194.
- Amemiya J., Wakabayashi K., Tanaka H. et al. // Foton Factory activity report 1984/1985.— Japan, 1986.— V. 3.— P. 163.
- 36. Synchrotron Radiation in Novosibirsk // CERN Courier.- 1977.- V. 17.-P. 62-64.
- 37. Вазина А. А., Железная Л. А., Матюшин А. М. п др. // Бпофизика.---1979.— Т. 24, вып. 3.— С. 495—500.
- 38. Сонькин Б. Я., Бару С. Е., Вазина А. А. и др. // Тр. V семпнара по дифракционным методам исследования искаженных структур (Иркутск, 1981).— Черногодовка: ИФТТ, 1981.— С. 26—27. 39. Вазина А. А., Гаджисв А. М., Герасимов В. С. и др. // Тр. II Всесоюз.
- сомппара по автоматизации научных исследований в ядерной физике и
- сомпитара по автоматизации научных песледования в здерном физике и емектых областих. Новосибирся, 1952. С. 180.—182.
 40. Вазина А. А. / Тр. Всесоюз. совещ. по пепоньованию сипхротропного научения СИ-82. Новосибирся, 1952. С. 171.—197.
 41. Сертненко П. М., Гаджива А. М., Вазина А. А. / Тр. VI Всесоюз. совещ. по использованию спихротронного палучения СИ-84. Новосибирся, 1984.-- C. 133-135.
- 42. Сергисико П. М. Примонение спихротропного получения в исследовании структуры мышцы в различных режимах одиночного сокращения: Автореф. дпс. канд. физ.-мат. наук.- Тбилиси, 1988.- 17 с.
- 43. Корнеев В. Н., Гераспмов В. С. // Открытия. Изобретения.- 1981.-**№** 43.
- 44. Корнеев В. Н., Сергиенко П. М., Шамаров А. М. // Открытпя. Изобретеиня.— 1986.— № 27.

- Phillips J. C., Wlodawer A., Yevitz M. M. et al. // Proc. Nat. Acad. Sci. USA.- 1976.- V. 73.- P. 128-132.
- USA.— 1910.— V. 13.— F. 120—102. (d. Phillips J. C. Hodgson K. O. # Synchrotron Radiation Research.— N. Y.; L. 1980.— P. 565-605. 47. Гадинкев А. М. Рептгенографическое последование с высоким времен-
- пым разрешением динамики мнозиновых мостиков в процессе одниочпого сокращения мышцы: Автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук.- М., 1985.— 17 c.
- 48. Галжиев А. М. // Физико-химические основы функционирования кисток. — Пущппо, 1983. — С. 9—16.
- 49. Гаджиев А. М., Матюшин А. М., Вазина А. А. и др. Программное обеснечение метода скоростной рептгеповской дифрактометрии с высоким временным разрешением. - Препр. - Пушино, 1983. - 12 с.
- чет о работах по использованию спихротронного излучения в Институте ядерной физики СО АН СССР.- Новоспонрек, 1981.- С. 31-32.
- 52. Baru S. E., Proviz G. I., Savinov G. A. et al. // Nucl. Instr. Meth 1978 .--V. 152, N 1.— P. 195—197.
- Mesentsev N. A., Sheromov M. A., Tolochko B. P. et al. // Nucl. Instr. Meth.- 1986.- V. A246.- P. 604-608.
- 54. Нифонтов В. И., Смирных В. В., Шейпгезпхт А. А. Измеритель временпых интервалов для спектроскопических памерений.- Преир./ИЯФ CO АН СССР.- Новосибирск, 1982.- 12 с.
- 55. Нифонтов В. И., Смирных В. В. Упиверсальное запоминающее устройство в стандарте КАМАК.- Препр./ИЯФ СО АН СССР.- Новосибирск. 1982.- 10 c
- 56. Fedotov M. G., Kuper E. A., Litvinenko V. N. et al. // Nucl. Instr. Meth .-1983.— V. 208, N 1/3.— P. 427-433.
- 57. Блоки, выполненные в стандарте КАМАК. Информационный материал.-Препр./ИЯФ СО АН СССР. — Новоспопрск. 1985. — 82 с.
- 58. Алешаев А. Н., Белов С. Д. Операционная система ЭВМ ОЛРА иля управления электрофизическими установками в ИЯФ СО АН СССР .- Препр./ ИЯФ СО АН СССР.- Новоспопрск, 1980.- 49 с.
- 59. Кротов С. В. Блоки управления шаговыми двигателями в стандарте КАМАК.- Препр./ИЯФ СО АН СССР.- Новоспбирск, 1982.- 12 с.
- 60. Купер Э. А. Цветной растворный дисплей ЦДР-2.- Препр./ИЯФ СО АН СССР. - Новоспбирск. 1984. - 18 с.

- Cotter Housed numbers, 1964. 16 C.
 CotyGenes Ro, M. M. A strokerping. 1986. Né 4. C. 63-66.
 Koster D., Khol K. S., Prins J. A. // Z. Phys. 1930. Bd 63. S. 345-350.
 Biyoet J. M. // Proc. K. ned Akad. Wet. 1940. V. 52 P. 313-318.
 Biyoet J. M. // Computing methods and phase problem in X-ray crystal analysis/Ed. R. Pepinsky. Pensylvania, 1951. P. 84-90.
 Biyoet J. M. // Nature. 1954. V. 173. P. 888-892.
- Okray Y., Pejnsky R. & Computing methods and phase problem in X-ray crystal analysis/Ed. R. Pepinsky, J. M. Robertson, J. C. Speaksmen.— Oxford: Pergamon Press, 1981.— 320 p.
- Ramachandran G. N. / Advanced methods in crystallography/Ed. G. N. Ra-machandran. L.; N. Y.: Acad. Press, 1964. P. 25-30.
- 68. Ramaseshan S. // Ibid.- P. 67-75.
- 69. Fuoss P. H. Structural studies of amorphous materials using X-ray anomalous scattering Stanford Synchrotron Radiation Report 80/06 .- Stanford, 1980.— 183 р. 70. Джейме Р. Оптические принципы дифракции рептгеповских лучей.— М.:
- ИЛ, 1950.— 572 с.
- 71. Parat L. G., Hampstead C. F. // Phys. Rev. 1954. V. 94. P. 1593-1600. 72. Dauben C. H., Templeton D. H. // Acta Cryst. 1955. V. 8. P. 841-842. 73. Templeton D. H. // Там же. 1955. V. 8. P. 842-844. 74. Cromer D. T., Liberman D. // J. Chem. Phys. 1970. V. 53. P. 1891-
- 1898.

- Cromer D. T. // Acta Cryst.- 1965.- V. 18.- P. 17-23.
 Fakamachi T., Hosoya S. // Acta Cryst.- 1975.- Sect. A. 31.- P. 215-220.
 T. Bonse U. // Z. Phys.- 1972.- Bd 253.- S. 232-239.
 Bonse U., Materik G. // Z. Phys.- 1970.- Bd 24.- S. 189-191.
 Freund A. // Anomalous Scattering/Eds S. Ramaseshan, S. C. Abrahams S. C.- Copenhagen: Munksdaard, 1975.- P. 68-870.
 Brentano J. C. // Z. Phys.- 1934.- Bd 39.- S. 735-770.
 Brentano J. C. // X. Phys.- 1934.- Bd 89.- S. 735-770.
- P. 368-371.
- 82. Blow D., Crick F. H. / Ibid.- 1959.- V. 12.- Р. 794-799. 83. Инсроиова В. И., Ревкевич Г. П. Теория расссяния рептеповских лучей. - 2-е изд. - М.: Изд-во Моск. ун-та, 1978. - 248 с.

Глава 6

ПРИМЕНЕНИЕ ДИФРАКТОМЕТРИИ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

6.1. ДИФРАКТОМЕТРИЯ СИ В ХИМИИ ТВЕРДОГО ТЕЛА

6.1.1. Типичные задачи химии твердого тела

В химии твердого тела изучаются реакции, в которых твердое вещество, обычно кристалл или кристаллический порошок. превращается также в твердое вещество (продукт реакцип) с отличными от исходного реагента структурой и морфологней. В частности, монокристалл, как правпло, превращается в хаотически разориентированный поликристалл (рис. 6.1), хотя возможны случаи, когда монокристалл трансформируется, не разрушаясь. Отсюда следует, что в химпи твердого тела при исследовании конкретных реакций мы сталкиваемся со сложной динамикой структурной перестройки реагепт - продукт, которая является неотъемлемой частью механизма реакции.

Проследить за динамикой превращения одной структуры в другую до педавнего времени не представлялось возможным по пескольким причинам. Первая — низкое временное разрешение серийных дифрактометров. Вторая - низкая иптепсивность дифрагированного излучения, не позволяющая исследовать объект in situ, т. е. прямо в реакторе, в среде газа или жидкости, с которыми твердое вещество вступает в реакцию. Наконец. трудности совмещения серниных дифрактометров с реакционными камерами пля исследования кинетики реакций, хотя примеры успешного решения этой проблемы имеются [1].

Все эти осложилющие обстоятельства приводят к тому, что практически единственным методом, широко используемым в настоящее время для отслеживания кинетики структурной нерестройки, является метод прерывания реакции (закалки). Однако практика показывает, что при таком способе всегда есть риск



Рис. 6.1. Схема протекания рсакции А_{тв} → В_{тв} + С_{газ}.

Рис. 6.2. Фото области кристалла, прилегающей к границе реагент — продукт.



получить неадекватную информацию, например, в связи с температурой пестабильностью исследуемой фазы, ее ваанмодействием с воздушной средой (кислород, влага, CO₂), светочувствительностью и т. п.

Описанный в пастоящей книге дифрактометр СИ имест следующе принципиальные преимущества по сраниенно с серийными: высокое временное разрешение (до 10-3 с); достаточную интенсивность первичного и дифрагированного лучей, что нозволяет легко «преодолевать» стенки («бкна») реакционной камсры и вести наблюдения непосредственно в процессе реакции; переменную длицу волны взлучения, что определяет дополнительную возможность регулирования проникающей способщости рентеновского пзлучения. Ниже па конкретных приморах ноказано, как эти преимущества могут быть эффективно использованы для получения сведений о динамике структурных превращений, сопровождающих химическую реакцию.

Другой класс задач, связанных с химическими и фазовыми превращевиями твердых тел, определяется гетерогенностью протекалощих процессов. В двухфазной спстоке А/В все превращения структуры локализованы в иепосредственной близости к так называемой поверхности (границе) раздела (см. рпс. 6.1). Эту границу хорошо видно из микрофотографяях (рпс. 6.2). Однако сделать какие-либо заключения о механизме структурной перестройки, о пшрине зовы локализации химических и структурных стадий реакции пе представляется возможным, если использовать обычные методы рептгеноской дифракции. Причина состоит в том, что зффективный объем зоны реакции, т. е. переходного слоя, приятающего к поверхности раздела, составляет, как правило, доли процента и менее от объема неходной или конечной фаз. Выделить полезный сигнал, обусловленный дифракцией именов в этом слое, весьма сложно, если не принять



Рис. 6.3. Схема исследования зопы реакции с помощью локальной дифрактометрии СИ с использованием детекторов ОД-2 (а) и ДЕД-ЗМ (б).

меры к локализации пучка рентгеновского взлучения до размеров, сравнимых с шириной зопы реакции (рис. 6.3). Так возникают задачи, локальной дифрактометрип СИ (поскольку в обычном методо локальность практически недостижима). Здеоь впомь решающее значение приобретает высокая яркость источпика СИ, поскольку локализация рентгеновского палучения достигается коллимацией пучка и, как следствие, снижается интецсивность полезного сигнала. В дифрактометре СИ достигнута локальность порядка $5 \cdot 10^{-4}$ см при сохранения ременного разрешения на уровне ~ 1 мин, что вполне приемлемо для решения миотих задач, в том числе задачи «дифракционного сканирования» зопы реакции в направления се распространения ра

Следует отметить, что локальный рентгенофазовый и рентгеноструктурлый анализ представляет в перспективе большой интерес как метод, дополнялощий локальный имический инкроанализ, обладая в то же время таким несомнепным преимуществом, как возможность получать структурную информацию от образцов, находящихся в контакте с газообразным (или жидким) реагентом. Как известно, последнее обстоятельство сильно ограничивает область применения «закуумых методов»: электронной микродифракции, электронного зогда и др.

Следующий тип задач, решаемых с помощью дифрактометрии СИ, относится к области механохимии — мовой, бурно развявающейся отрасли химии твердого тела. Механохимия научает реакционную способпость твердых веществ в момент механического воздействия на образец (удар, сдвиг, склатие и т. п.) или вепосредственно после него. Источником повышенной химической активности твердых тел явллются искаления их структуры, пакалпивающиеся в ходе механической активнации и релакспрующие после окончания обработки. Оба процесса — и пакопление, п релаксация — представляют значительный нитерес с точки зрешия научения механияма этого явления. Дифрактомотрия СИ в силу своего быстродействия и здесь стала ушикальным методом исследования. Предметом анализа является форма дифракционной линии, которая при определенных допущениях содержит информацию о размерах блоков когерентного расселния, об остаточных напрямениях и о микродеформациях. По кинетике релаксации можно определять тип дефектов, являющихся источниками внутренних напряжений, а значит, и избыточной эвергии в образце.

6.1.2. Синтез алюминида никеля в режиме горения

Реакция взаимодействия алюминия с инкелем была выбрана как молельная с целью лемонстрании возможностей скоростной дифрактометрии СИ для изучения последовательности фазовых превращений в системе [2]. Эксперимент ставился таким образом, что фронт реакции, перемещаясь по образцу (цилиндр днаметром 0,5 см и длиной 3 см) со скоростью 1 см/с, достигал области, па которую был сколлимирован шелью первичный пучок СИ с определенной длиной волны. Дифрагированное излудетектировали однокоординатным детектором. чепие Таким образом, процессы, происходящие в волие горения, разворачивались во времени будучи привязанными к выбранной точке (ссчению образца). Результаты эксперимента представлены на рис. 6.4. Наряду с исчезновением исходных фаз (Ni, Al) в результате плавления было обнаружено, что формированию конеч-



Рис. 6.4. Исследование кипетики СВС-процессов. в — схема эксперимента; б — результаты исследовании последования последования продукт). вых провращений ири синтезе NiAi (1, 2 — промежуточный, 3 — конечный продукт).

ного продукта NiAl предшествует появление как минимум прух промежуточных фаз неизвестной природы, каждая из которых характеризуется своим набором межилоскостных расстоящий. Для интерпретации этого результата необходимы дополнительные исследования, по факт обнаружения в реальном времени определенной последовательности фазовых превращений является мощным стимулом развития техники скоростной дифрактометрии, получившей название «дифракционного кино». Так, пля специалистов в области горения конценсированных составов папный результат может означать, что тепловой эффект реакции «разменивается» на отдельные слагаемые п зона основного тепловыделения, возможно, отстает от переднего фронта реакции (горения) на значительное расстояще. В частности, по измеренным независимо скорости горения v = 0.01 м/с и времени появления фазы NiAl (после прохожления перелнего фронта) можпо оценить протяженность зоны превращений как v $\Delta t \sim 1$ м. Это псожиданный результат.

6.1.3. Синтез фторапатита

В работе [3] пзучали синтез фторапатита из предварительно аморфизонанного в результате мехапической активации гидроксилливатита и САГе. Твердофазный синтез в такой сложной системе проводили при линейпом пагреве со скоростью 100 К/мин. Особенностью системы является то, что в ней идут параллельные процессы, с одной стороны, отжита (кристаллизации) аморфизованных исходиых составляющах, с другой собствению твердефазиото ванимодействия с образованием также кристаллического фторанатита. Обычными методами эти процессы питез в также кристаллического фторанатита. Обычными методами эти процессы разделить трудно, в силу чего роль аморфизованного состоялия в синтезе консчиюто подукта определить невозможно.

Эксперямент с использованием СИ выявля сложную картипу спитеза (рис. 6.5). В частности, обнаружен необычный факт, когда в системе виначале образуется кристаллическая матрица апалита, когорая затем, при более высоких темнературах, связывается с CaF2, образуя конечный продукт сиптеза. Этот прпмер вновь показывает пеоспорныме препмущества дифрактометрии СИ перед традиционными методами исследования твердофазных провращений.

6.1.4. Катодное наводораживание никеля

В предыдущих примерах дифрактометрия СИ примепялась для быотрого детектирования наличия (отсутствия) кристалир ческих фаз в ходе реакции. Однако высокая интенсивность СП и его хорошая монохроматизация позволяют судить (при точном определении положения и формы лишии) и о состоялии исходлых или образующихся фаз, в частности о паличии микро-



Рис. 6.5. Поведение расселния СИ при взапмодействии аморфиой фосфатной фазы и кристаллического флюорита.

I - исходная смесь; 2, 3, 4 - соответственно через 105, 150 и 255 с отжига.



Рис. 6.6. Зависимость измепения интенсявности рефлексов апатита п флюорита от времени отжига.



деформаций и внутренлях напряжений. Хорошим примером такого рода является процесс катодного наводораживания никеля [4]. Когда мы говорим о катодном паводораживании, тем самым подразумеваем, что образец никеля находится в контакте с электролитом. Электролит при этом является дополнительной рассеивающей средой (аморфиой), сильно ослабляющей дифрагировапное пзлучение.

Для решения поставленной задачи используется уникальная позможность измепяль (выбирать) дляну волны СИ. В данном случае съемка рентгенограмм на длине волны $\lambda \simeq 0.4$ Å позволяет получать хорошо разрешенную дифракционную картину, в которой просложивается не только исходная фаза нижеля, но и фаза образующегося в цезначительных (да начальной стадии реакции) количествах гидрида нижеля.

Результаты эксперимента представлены на рис. 6.7, 6.8. Рис. 6.7 показывает отличие процесса наводораживания в первом и втором циклах. Образование гидрида никеля во втором цикле идет заметно быстрее. Система как бы обладает памялью. Чтобы полять причины этого эффекта, необходимо прежде всего



Рис. 6.8. Поведение структуры металла при катодном наводораживания. а — изменения области котерентного расселиня (L) в Ni-процессе наводораживания: 1 — (100), 2 — (111); 6 — рост размеров аздоранией Ni. в матрике Ni. установить локализацию процесса формирования фазы гидрида никеля. Использул локальную дифракцию на отдельных зернах поликонсталлического никеля, удалось показать, что выделение зародышевых образований фазы гидрида пикеля происходит в межзеренном пространстве. Поскольку гидрид шикеля имеет больший молярпый объем, чем пикель, его зародыши являются дилатпрующими включениями, которые оказывают сжимающее возлействие на кристаллиты никеля. Этот эффект легко фиксируется по изменениям формы дифракциопной линии. На рис. 6.8 показано, как изменяются размеры блоков когерептного рассеяния для никеля и гидрида никеля в одной и той же временной шкале. Увеличение размеров зародышей гидрида никеля вначале, как и можно было ожидать, вызывает уменьшение размеров блоков когерептного рассеяния для никеля, по затем, по достижении некоторого критического значения, размеры блоков ишкеля быстро возвращаются к своему исходному значению. Очевидно, этот возврат свидетельствует о пластической деформации в зернах никеля вследствие релаксации возникших на более ранней стадии напряжений.

Теперь становится ясно, почему после дегидрирования процесс паводораживания в следующем цикле протекает легче: структура металла претериела необратимые изменения на уровне межазеренных грапиц. Пространство, «завоеванное» гидрицом пикеля в первом цикле, сохраняется, и формирование фазы гидрлда никеля во втором и последующих циклах происходит при меньшем схимающем противодействии со сторовы металла.

Необходимо отметить, что подобное исследование не могло быть выполнено без помощи СИ в первую очередь из-за наличия электролита, в значительной степени рассепвающего рентгеновское палучение.

6.1.5. Топохимические реакции разложения

С помощью дифрактометрии СИ были изучепы реакции термической дегидратации в вакууме пентагидрата сульфата ме ди (CuSO₄·5H₂O), моногидрата сульфата лития (Li₂SO₄·H₂O) и гвиса (CaSO₄·2H₂O). Все эти соедипения при нагровании (ва куумировании) терлот кристаллизационную воду, образуя поликристаллический твердый продукт реакции. Таким образом, реализуется сигуация, показанная ранее схематически на рис. 6.1 и требующая для изучения. применения покальция методов.

Локализация пучка СИ до размеров менее 10 мкм представляет собой весьма трудную задачу главным образом из-за отсутствия эффективных методов контроля размеров пучка. Традициопные флуоресцентные или фотографические составы имеют инакую разрешающую способность и не позволяют судить с достаточно высокой точностью о размерах пучка в области «10 мкм. В работо [5] осуществлена коллимация двумя взаимно перпендикулярными щелями с ширпной раскрытия 2—3 мкм, так что можно было полагать, что размеры пучка не превышали 5×5 мкм². Однако, как указано рапее, пикаких других доказательсти, что эти размеры именно таковы, пока пет. Можно лишь с уноренностью утверждать, что размеры пучка менее 10 мкм того предела, до которого можно ориентироваться по флуоресцентному экрану. Впрочем, как будет видио из дальпейшего, эксперныент сам подтвердия справедливость сделалных оценок.

Схема эксперимента показана выше на рис. 6.3. Пропесс пегидратании осуществляли в вакуумной камере при нагревания. Образцы представляли собой топкие пластинки (~1 мм), в которых фронт реакции распространялся с боковой грани но кристаллу. В определенный момент фронт реакции пересекал цадающий нучок СИ, возмущая картину дифракции от исходного монокристалла. По мере продвижения фронта зона реакции как бы сканирустся. Если известна скорость продвижения, то от временной развертки можно перейти к зависимости от коордипаты в направлении продвижения фронта реакции. Однако сделать это проще пругим способом, а именно перемещая образец вдоль той же координаты (механическое сканпрование). Результаты опытов показаны на рпс. 6.9 и 6.10. Для обоих соединений скорость продвижения фронта составляла ~10-6 см/с и естеоптическая

стиснное сканпрование заняло бы слишком много времени. Поскольку конечная фаза реакции — поликристаля, то опа не фиксируется в выбранном варианте съемки (но Лауз), и, следовательно, представленные на рис. 6.9 и 6.10 завлегимо-







Рис. 6.9. Структурные даменения в области реакционной граници раздела. a = изменение интенсивности рефлекса (130) исходного СиSO.-SILO во времени приприближения к реакионной границе раздела: <math>I = 300 K, $\omega = 3 \cdot 10^{-4}$ Смус, 2 = T = 310 K, $\omega = 5 \cdot 10^{-4}$ смус, $C = 5 \cdot 10^{-4}$ смус, $\omega = 5 \cdot 10^{-4}$ с



Рис. 6.10. Зависимость интепсивности, межилоскостного расстояния и полуширним отражения (002) исходного Li₂SO₄. H₂O от координаты пбинзи видимой границы (указана стрелкой).

сти отражают ход исчезновения фазы реагепта. Можно видеть, что как для CuSO₄ · 5H₂O (см. рис. 6.9). для так и рис. 6.10) Li2SO4 · H2O (CM. зона структурной перестройки. а значит, и зопа реакции, имеют доводьно большую протяженность, так что указанного выше пространственного разрешения оказалось вполне достаточно, чтобы получить довольно детализованную зависимость интенсивности линии от координаты.

На рассматриваемых рисунках стрелкой показано положение видикой границы раздела реагент/продукт. Примечательно, что искажения в структуре реагента, фиксируемые по смещению линий и по их упирению, начинаются еще до подхода видимой границы раздела, фиксируемой по светорассеянию. Это свидетельствует о некотором десинхронизме структурных и морфолотических изменений в ходе реакции.

Надо отметить, что сведения о ширине реакционной зоны топохимических реакций получены прямым методом впервые и лишь благодаря новым возможностям, которые привносит СИ в реятленовскую дифрактометрию.

Дальнейшее развитие информативности метода должно идти по пути применения двухкоординатного детектирования дифрактограмм в силу того, что при работе с монокристаллами однокоординатный детектор может быть настроен на ограниченное число дифракционных максимумов, а направление их смещения заранее предсказать трудно. В результате этого смешение рефлекса от своего равновесного положения может произойти и таким образом, что он выйдет за пределы линейки детектора, что будет фиксироваться как снижение интенсивности вплоть до нуля. Пвухкоординатный детектор позволяет получить дополнительную информацию, хотя ее обработка, конечно, представляет большие трудности. На рис. 6.11 показан пример использования двухкоординатного детектора для сканирования зоны реакции дегидратации гипса. Это сложный минерал, и при его дегидратации в области видимой границы раздела реагент/продукт структура искажается, что видно по уширению рефлексов. Однако видно


Рис. 6.11. Структурные пзиспения у монокристалла гниса в зоне границы раздела. Расслоение слонстой структуры, сопроводающеся деформационными искажениями — изгибом (а. 6, о); релаксация выдряжений (г, д).

и другое: рефлексы уппиряются лишь в радпальном направленап. При соответствующей орпентации липейный детектор мог и и зафиксировать этот эффект.

6.1.6. Исследование релаксационных процессов

В работе [6] дифрактометрия СИ успешно использована для изучения релаксации механических напряжений, возникаюцих в серебре при его деформация срезанием. Срезали топкие (днаметром 1 мм) проволоки из серебра с помощью специального устройства с рубнюзым ножом. Поверхность среза была доступна для получения первого дифракционного снимка через 0,4 с. На рис. 6.12 показано, как выгиялит рефлекс 400 серебра сиустя 0,4 с после среза. Ушпрение и смещение центра линии столь велики, что позволяют судить о значительных структурных папряжениях, быстро спадающих во времени. В данном случае пременибе разрешение дифрактометра достаточно для того, чтобы проследить за кипетика периопачального быстрого тапа реалансации. Этот этап от температуры: не зависят. Его





Рис. 6.12. Рефлекс (400) серебра. 1 — по деформации: 3 — через 0.4 с после деформации срезом (t = 0.4 с, $\epsilon = 0.6$ %, $\langle e^2 \rangle^{1/2} = 4.5 \cdot 10^{-3}$, (L) = 100 Å, $\alpha = 2.5$ %, $1/I_{\Phi^-}$







Рис. 6.14. Относительные изменения Рис. 6.15. Наменение о-полушириполуширины рефлекса (111) после ны рефлекса (111) серебра при деформации срезом. 50 °С. Температура отжика, °С: 1 – 25; 2 – 80; 1 – на воздухе; 2 – при контанте с 3 – 95.

сменяет этап более медленной релаксации (рпс. 6.14), которая к тому же зависит от температуры, с энергией активации около 1 эВ. Очевидно, что обе стадии релаксации обусловлены различными механизмами, вероятно, чисто дислокационной ползучестью на первом этале и диффузионной подвижностью на втором.

Важно отметить, что дифрактометрия СИ нозволяет исследовать тот же процесс релаксации, но в присутствии растворителя. Пример показан на рис. 6.15 для серебра в контакте с раствором AgNO₃. Видно, что наличие растворителя существенно ускорлет процесс релаксации упругих напряжений.

На станции (см. ниже [53] к главе 5) выполнена серия экспериментов по моделированию реальных мехапохимических процессов [7]. С временным разрешением 10⁻³ с исследовался процес деформации и релаксации при ударном нагружении.

Конечно, эти эксперименты посят в какой-то мере демонстрационный характор, по опи приближают нас к решению вполпе практических задач изучения импульсного нагружения па твердое вещество, например в зоне удара. Опыт использования дифрактометрии СИ в химпи твердого тела пока невелик, по он подтверждает перспективность данного направления. В ближайшей перспективе метод обеспечит временное разрешение до 10⁻⁶ с и пространственную локализацию до 1 мкм. В настоящее время главная проблема — создание специальных реакторои, совместимых с дафрактометром и позволяющих осуществлять самыс разные поздействия на твердые тела. Это позволит смоденировать и научить в реальном времени ряд теоретически и практически важных процессов, пмеющих принципиальнос значение для химии твердого тела и смежных с ней отраслей.

6.2. ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКТУРЫ ЭЛЕКТРОХИМИЧЕСКИХ ОСАДКОВ В ПРОЦЕССЕ ЭЛЕКТРОЛИЗА

При исследовании процессов электрокристаллизации чрезвычайно актуальным является вопрос о зависимости структуры иолучающихся осадков от режима процесса. Этому вопросу в литературе уделено большое внимание [8]. Однако при использовании традиционных рентгеноструктурных методик возникает следующая проблема: между окончанием электролиза п началом регистрации рентгенограмм проходит от нескольких минут до пескольких часов, а за это время с осадком могут произойти необратимые изменения. Радикальным решением этой проблемы была разработка методики исследования структуры гальванических осадков в процессе электролиза. Но реализация такой методики при использовании рептгеновских трубок — задача чрезвычайно трудная, так как дифрагированное в электроде рептгеновское излучение Io сильно ослабляется при прохождении через реально используемые электролиты (рис. 6.16), и информация о структуре гальванического осадка при этом почти полностью теряется. Кроме того, па рентгенограмму от электрода пакладывается фоновое рассеяние от электролита In. что еще более усложияет задачу [9].

Для уменьшения влияния электролита в работе [10] применяяся разбавленный раствор (0,002 л. азотнокислое серебро), покрывающий топкой пленкой (100-200 мкм) исследуемый электрод, а в работе [11] электрод соприкасался с раствором только одной своей поверхиостью, и регистрация осуществиялась со стороны «сухой» стороны электрода. В обоих случаях удалось получить рептечнограмых в процессе электролиза, однако в нервом случае из-за малой толщины слоя электролита корректное проведение процесса оказалось делом весьма трудным, а использование концептрированных электролитов — невозмож-



Рис. 6.16. Схема эксперпмента по исследованию структуры электрода, находящегося в электролите.

ным, во втором — методика накладывала весьма жесткие ограинчения на материал катода, так как при использовании металлов также возникает проблема полной потери в материале катода информации о процессах, происходящих на интересующей нас поверхности.

6.2.1. Преимущества использования синхротронного излучения

Использование СИ открывает для исследователей принципиально новые возможности при исследовании образования гальванических осадков. Это обусловлено прежде всего уникальными свойствами СИ [10].

За счет высокой спектральной яркости СИ в днапазоне длии воли 0,7—1,5 Å, в котором обычно проводят рептгеноструктурные исследования на рентгеновских трубках, можно пренебреть ослабленнем дифрагпрованного излучения в растворе, так как I'_D достаточно большая величива, но по-прежнему остается проблема фонового излучения. Поэтому при съемке дифракционной картипы от исследуемого электрода были зарегистрированы сразу дво рептгенограммы, наложенные друг на друга; от поликристалла, с ярко выраженными рефлексами, и широкий дифракционный максимум от раствора, шитеисивность которого медленно уменьшается в области больших углов [14].

Использование непрерывности спектра СИ в широком энергетическом интервале позволяет уменьшить вклад в рептгенограмму фонового расселния от раствора. Последнее обусловлево тем, что коэффициент поглощения $\mu(\lambda)$ раствора экспотенциально синжается с уменьшением длины волны (рис. 6.17). Поэтому при малых длинах воли ослаблением дифратированного излучения в растворе можно пренебречь, так как $\mu(\lambda) \sim 1$. Последнее озлачает, что в расскатриваемом объекте уменьшается вторичное рассеяние и соотношение сигнал/фоп определяется уже не ослаблением в электролите дифрагированного электродом излученяя, а соотношением рассеяния первичного пучка электродом излученя, а литом. Например, при использовании СИ с дляной волны 1,5 Å для исследования структуры серебряного электрода, находящетося в 0,1 M растворе азотнокислого серебра тоставляло 0,1, а при уменьшении лини волны по 0.4 Å — возвосло по 10.

При малой расходимости можно сформировать узкий пучок с дельтаобразной аппаратной функцией, что в принципе позволяет осуществлять регистрацию репттеновского излучения в очень малых углах дифракции, недоступных па репттеновских аппаратах. Кроме того, при узкой аппаратной функции можно более корректно определять физические уширения рефлексов, обусловленные искажоннями кристаллической решетки. Дискретная временные искажоннями кристаллической решетки. Дискретная временные искажоннями кристаллической решетке. Дискретная временные покажоннями кристаллической решетке. Дискретная временные искажоннями кристалический разволяет в принциие ставить уппкальные задачи с пико- и паносекупдным временным разрешением.

6.2.2. Электрохимическая ячейка

Для работы с СИ разработана электрохимическая ячейка (рис. 6.18). Корпус ячейки, выполнепный из фторопласта, состоит из двух втулок, между которыми располагаются исследу-



Рис. 6.18. Слема электрохнипческой ячейки для работы с СИ. и выходное окно; з — напиляр; з — входное окно; з — электрод; 5 — исследуемый электрод; 6 — токопорасу; 7 — заготродат; 3 — корпус ячейки.

емый электрод, вспомогательный электрод и капилляр для электрода сравнения. Пучок СИ попадает во входное окно ячейки, рассенвается па исследуемом электроде, и дифрагированное излучение выходит через второе окошко, выполценное для увеличения угла регистрации в виде копуса. Форма пучка СИ задается коллимационной системой и может изменяться: вертикальный размер — от 5 мкм до 1 мм, горизонтальный — от 5 мкм до 10 мм. Исследуемый электрод изготовлен из фольги, которая зажимается с двух сторон фторопластовыми прокладками. Толщина фольги определяется поставленной задачей и может изменяться от нескольких микрон до нескольких миллиметров. Максимальная толщина зависит от коэффициента поглощения материала электрода. Вспомогательные электроды изготовляются в виде колец, расноложепных симметрично отпосительно исследуемого электрода. При таком расположении электрохимический процесс протекает одновременно на двух поверхностях исследуемого электрода, это унсличивает расселние СИ от гальванического осадка и таким образом способствует улучшению соотношения сигнал/фон.

Для исследования структуры электрохимических осадков в процессе электролиза для электрода желательно использовать фольгу минимальной толщины, так как при регистрации дифрагированного излучения от исследуемой системы мы получили наложение четырех рентгенограмм: от электролита, фторопластовой пленки, фольги и гальванического осадка. При умецьщении вклада от первых трех источников рассеяпного излучения более надежно регистрируется рентгенограмма от интересующего нас гальванического осадка. Для более надежной регистрации рептгенограмм от гальванических осалков желательно, чтобы материал электрода соответствовал следующим требованиям: 1) цавал возможно меньшее количество рефлексов; 2) межплоскостные расстояния кристаллической решетки электрода не должны совнадать с таковыми гальванического осадка или ожидаемого продукта электрохимической реакции; 3) эпергия возбуждения перехода К — уровня материала электрода — должна быть больше энергии фотонов СИ, используемых в эксперименте.

Толщина электролита может регулироваться за счет изменения толщины фторопластовых прокладок между рабочим и вспомогательным электродами. Окошки меейки изготовлены из фторопласта толщиной 10 мкм. С увеличением концентрации электролита изменяется коэффициент поглощения и растет фоновое рассениие (см. рис. 6.17). В случае электролита, примеляемого в конкретном эксперимение, требуется уменьшать длину волны до тех пор, пока соотношение сигнал/фон пе возрастет до приемлемой величины.

При необходимости катодное и анодное пространства могут быть разделены, папример при работе с потенциалами, сильно отличающимися от равновесного, когда возможно выделение водорода на катоде и кислорода па аноде, однако по условию эксперимента недопустим доступ кислорода на катод, а водорода на анод. Для подобных экспериментов ячейка соедпияется через плящо с дополнительной емкостью, в которой размещается протвознектрод. Такая схома позволяет работать с более тонким слоем электродита, что существенно улучшает соотношение сигнал/фон. В то же время разнесение электродов приводит к неравномерному распределению потенциала по поверхпости исследуемого электрода, что в некоторых сдучаях педопустимо. На практике даже в такой схеме не удается сделать толщину электролита меньше 2 мм, так как при меньших размерах между электродов п фторопластовым окошком возможно образование пузкрьков воздуха, удалить которые при малых толщинах электродита чрезвъчайно трудно, кроме того, возможно провисание фторопластовой пленки и соприкословение е с исследуемым электродом, что также крайне нежколтельно.

Ячойка устанавлинается на дифрантомстре СИ таким образом, чтобы ось гоннометра проходила в плоскости исследуемого элекгрода. Специальный механический привод фирмы «Микроконтроль» (Франция) позволяет сканировать электрохтвическую ячойку (и пселедуемый образец, паходлицийся в ней) с шагом 1 мкм, что дает возможность ставить задачи по исследованию распределения гальванического осадка по электроду вблизи межверенных границ, дислокаций, микропскажений и т. п.

6.2.3. Управление

электрохимическим экспериментом

Режим электролиза задавался с помощью потенциостата ПИ-50, управилемого цифроаналоговым преобразователем (ЦАП), выполненным в стандарте КАМАК. С помощью друх апалого-цифровых преобразователей (АЦП), также выполненных в стандарте КАМАК, в ЭВМ ОДРА-1305 вводилась информация о потенцилле и токе, протекающем в электрохимической ячейке, на монитор. В случае необходимости она записывалась на магинтпую ленту. Одповрементю с поляризацией электрода осуществяллась регистрация рептенограмм на дифрактометере. Общее управление экспериментом осуществлялось программой-диспетчером, которал согласовывала работу электрохимической и рентеноструктурной апиаратуры.

6.2.4. Оценка влияния облучения пучком СИ на процесс электроосаждения металлов

При работе с СИ образец облучается очень мощным потоком у-квантов. Особенно велики потоки у-квантов при работе с сбелым» пучком — 10¹⁴ фот./(с мм) (что соответствует 10⁵ Р/с). При таких дозах облучения образец пагревается, в нем возникают радпационные повреждения и за счет фотозффекта на несовершенствах кристаллической решетки скапливается заряд, что может привести к разрушению образац (например, органические



Рис. 6,19. Серия рептгенограмм, получепных в процессе электроосаждения олова па медпом алектроде.

 2, 3 — соответственно 0, 10, 20 мкм Sn.

кристаллы взрываются под белым пучком СИ). При работе с монохроматизпрованным пучком СИ на описанном выше дифрактометре доза облучения образда регулируется с помощью ослабянощих фильтров первичного пучка и определлется быстродействием детектора и системы регистрации. В настоящее премя регистрярующий комплекс позволяет обрабатывать до 2 · 10⁵ фотоовов, дифрагированных в экваториальвой плоскости дебастраммы за 1 с. Чтобы обеспечить такие потоки дифрагированного излучения, образец может получить во время эксперимента дозу ~ 10 Р.

Для оценни влияния таких доз облучения на исследуемые нами материалы электрод, находящийся в ячейке, в течение нескольких часов подвергался воздействию облучения. При этом одновременно: 1) измерялась температура электрода; 2) в процессе облучения регистрировалась серия рентгенограмм от электрода и зашисывалась на магнитную ленту; 3) измерялась величина рН раствора; 4) регистрировалась серия поляризационных куплых. Во всех контрольных экспериментах, кроме намерения температуры (которая возрастала на 1°С), в процессе облучения не было зафиксировано (в пределах ошнбки) инкаких изменений.

Кроме того, для оценки возможности возникновения точечных дефектов при облучения СИ проводились измерения электросопротивления медлой проволоки до облучения «бельм» пучком СИ и после него. Никаких изменевий в пределах опшбки также не обларужево. Для констроля используемой для измерений методики одни тестовые образцы закаливались, а другие облучались влектронами энертией в 4 МэВ. В обоих случалх зафиксировано увеличение электросопротивления до 10 %.

В результате проделанных контрольных экспериментов можно сделать вывод, что при вспользовании предлагаемой методаки исследования структуры электрохимических осадков в процессе электролиза СИ не оказывает заметного влияния на структуру исследуемого металлического электрода и на процесс электроосаждения металлов. Одним из первых экспериментов, выполненных с помощью рассмотренной методики, было исследование электроосаждения опова из промышленного электролита на медном электроде (ряс. 6.19). В процессе электроосаждения с заданным интервалом времени регистрировалась серия ренттенограмм, и уже на начальных стадиях электрокристаллизации удалось зарегистрировать рефлексы от олова. Толщина осадка оценивалась по количеству протекшего электричества и не превышала 500 Å. В ходе этого эксперимента удалось проследить за диваликой изменения субструктуры осадка — от неравновесной, искаженной кристаллической решетки на начальных стадиях процесса, к раввовесной на стадиях формироватия толстого осадка олова.

При псследовании процессов электрокристаллизации большое виямание уделяется процессам наводораживания как осадка, так и подложки. Поэтому нами был поставлен эксперимент по исследованню дипамини развития пскажений кристаллической решетки пикеля при катодном наводораживания. В ходе этого эксперимента одповременно изучалась динамика образования гидрида пикеля.

В настолщее время с помощью данной методики исследуются процессы получения хромовых покрытий и образования оксидов серебра.

6.3. ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКТУРНЫХ ИЗМЕНЕНИЙ МЫШЦЫ В ПРОЦЕССЕ СОКРАЩЕНИЯ С ВЫСОКИМ ВРЕМЕННЫМ РАЗРЕШЕНИЕМ 6.3.1. Современные представления о структуре мышцы

и механизме ее сокращения

Поперечно-полосатая скелетная мышца состоит из продольных пучков волокон. Волокпо является сильно вытянутой многодерепой клеткой. Волок волокна в саркоплазме расиоложены миофибриллы днаметром 1—2 мкм, с которыми и связава способность мышцы сокращаться. В поляризованном свете для миофибриля характериа поперечиая исчерченность — чередолание полос: темных, проявляющих двулучепреломление, называемых А-зопами (анизотроиными), и светянх, не обладающих этими сойствами, называемых 1-зонами, (паотроиными). В середние I-зопы выделяется темная липия Z (зет-диск), в середние 4-зопы падпы более светяля H-зона и топкая M-липия. Участок между Z-липиями называется саркомером, длина его порядка 2—3 мкм. Таким образом, миофибрияла представляет собой рад



Рис. 6.20. Схема структурных элементов мышцы.

а — структура толотой инти в невозбужденном состоянии; б — структура толотой инти в возбужденном состоянии и тоикая инть; в — продокная упановная тоистых, М п тончих (A) интей в саркомере 1 — в покос (A, M), 3 — при сокращении (A*, M*); е — поверочная упаковная интей; б — тригозналыный канал тенсатолальной решетсяти мышица: мостики толотакы интей приближены и ктокой пити.

упорядоченную систему толстых и тонких питей, протофибриля. В каждом саркомере имеются два вабора топких питей, прикрспленных к Z-дискам, и один набор толстых линий, образующих A-полосу.

Мышца является мехапохимической машипой С высоким КПД. В структурном отпошении мышцу можно рассматривать как лиотропный жидкий кристалл [15, 16]. Гексагональная решетка жилкого кристалла мышпы формируется двумя тинами разносимметричных нитей (рис. 6.20, г). Согласно современным представлениям, сокращение мышцы реализуется за счет взаимного скольжения пвух типов нитей: толстых и тонких, состоящих соответственно из белка мнозина и актипа [17]. В покоящейся мышце решетка тонких питей лишь частично перекрывается гексагональной решеткой толстых интей (см. рис. 6.20, с). Нити имеют степень свободы вдоль оси саркомера — структурцой единицы мышцы. При сокращении происходит вдвижение тонких нитей в пространство между толстыми, длина саркомера уменьшается, а поперечное расстояние между нитями увеличивается. поскольку объем мышцы остается неизменным. Толстые и топкие нити представляют фибриллы длиной 1-2 мкм и диаметром соответственно 140 и 80 А. Толстая нить формпруется в результате самосборки отдельных мнозиновых молекул с молекулярной массой около 500 тыс. Длинные α-спиральные хвосты миозиновых молекул, упакованные бок о бок и хвост к хвосту, формируют жесткий ствол фибриллы; глобулярные головки образуют парные выступы — мостики; каждая пара мостиков поверпута относительно соседней на 120° и сдвинута вдоль оси на 143 А. так что нить имеет винтовую ось симметрии третьего порядка З1 и

```
период структуры 429 А (см. рис. 6.20, г) [18, 23].
```

Топкая пить формируется путем самосборки глобулярных молекул актина с молекулярной массой около 40 тыс. и имеет пецелочисленную винтовую ось 13/6, т. е. 13 глобул укладываются

в шести оборотах спирали, образующей полпый период 365 Å (см. рис. 6.20, б). Структура тонкой нити полярна — она не имеет осн второго порядка, перпендикулярной оси пити [19]. Тонкая нить промодулирована минорным регуляторным белком тропови-

ном, который расположен с периодом 380 Å вдоль тонкой пити, так что тонкая нить в целом оказывается апериодической структурной единицей. Таким образом, гексагопальная решетка форвируется разносимметричными фибриллами. Следует подчеркнуть, что периоды этих нитей различны, т. е. мышца является иссонамернмым кристаллом. В покое пити контактируют, период гексагональной решетки составляет 400 Å, что больше диаметра цитей.

Структура толстых интей лабильна: головки мнозина — мостики — способны к радиальному движению отпосительно оси нити (см. рпс. 6.20, 6). В мостиках локализован активный центр фермента АТФазы, способного гидролизовать макроэргическую связь АТФ. Мнозин и актин в отсутствие АТФ могут образовывать устойчивый актомнозный комплекс за счет специфического взаимодействяя; в присутствии АТФ этот комплекс диссоципрует на актин и мнозани таким образом, что только мнозин ответствен за расщепление АТФ, а активного центра фермента [21].

Молекулярный механизм скольжения питей до сих пор пепавестен. Предполагается, что скольжение обеспечивается периодическим контактным взаимодействием толстых и тонких нитей через поперечные мнозиновые мостики [17]. Усплие развивается в период существования стереоспецифического контактного взаимодействия межцу актином и мнозином за счет конформационных переходов в структуре мостика. При этом мостик, меняя свою аксиальную ориентацию (в покое он перпендикулярен стволу, а в активной фазе угол наклона уменьшается до 45°), протаскивает тонкую нить. Очевидно, что чем больше мостиков вступает в действие, тем большую силу развивает мышца. В процессе мехапохимического акта утилизируется энергия АТФ, роль иницпырующего агепта выполняют катновы Са²⁺, концептрация ко-торых при возбуждении увеличивается с 10⁻⁷ до 10⁻⁵ М. В мышцах высших организмов ионы Ca2+ оказывают действие на систему, локализованиую на тонкых актиповых нитях, а именно тропомиозин — тропонин [22]. Известно, что палочкообразные молекулы тропомнозипа можно видеть в двух длинных канавках двойпой спирали актицовых нитей. Каждая молекула тропомнозина занимает семь молекул актина, и с каждой молекулой тропомпозина связан тропопиповый комплекс, состоящий из трех субъедници - тропонинов - С. І. Т. Принятая в цастоящее время модель такова, что когда тропония-С связывает Са²⁺, субъединица тропония-I, присоединениая к актину, освобождается, позволяя тропомиозину изменить положение на актиновой инти таким образом, что он перестает блокировать связывание миозина [24]. Возможно, что эта модель излишие упроцена, так как имеются данные [90] о том, что тропомиозии, возможно, располагется в положении, где он не может блокировать присоединение миозиновых головок, и изменения в его положении, индуцируемые связыванием иопов Са²⁺ тропоницом, будут действовать более сложивым образом.

Согласпо традиционным представлениям, сократительная система рассматривается как принципиально одномерная система, так как периендикуляриме ося волокна компоненты сил либо скомпенсированы, либо малы по сравнению с осевыми компонентами.

В этой моделя достаточно двух питей и одного мостика, который, работая подобно багру, периодически прикрепляется к тонкой нити и протаскивает ее относительно толстой. Центральным моментом в такой схеме является образование контакта между стереоспецифическими центрами мнозицового мостика и активной глобулы (особеплюсти структуры фибриля при этом не имеют значения).

Результаты дипамических исследований структуры пе укладываются в представления контактной мостиковой модели и требуют принципиально другого подхода к выбору функционально значимого элемецта структуры сокращающейся мышцы. Функция сокращения обеспечивается не двумя нитями, а упорядоченным ансамблем толотых и тоиких питей. При этом оказывается существенным, что жидкокристаллическая структура такого ансамбля формируется фибриллами с различными периодами и разными симметриями (см. рис. 6.20).

Рассмотрим результаты рептгеновских исследований мышцы как в статическом, так и в динамическом состояливи. Мышца ушихальный объект для рептеповских исследований: высокая упорядоченность структуры существует пеносредственно в живой клетке, тю дает возможность исследовать структуру в услошихх, близких к физиологическим. Большие периоды структуры мышцы формируют дифракционную картину в области малых углов дифракции как в меридиопальном, так и в экваториальном направлопии.

6.3.2. Интерпретация рентгенограмм мышцы в различных состояниях

Мыщца является сложным надмолекулярным кристаллом, построепным на крупных макромолекул. Десятки различных бенков упакованы в сипральные фибриллярные структуры — толстые и тонкие шити, образующие гексатодальную решетку. Рештеповская дифракция на спиральных структурах разработана в 1950-х гг. английской школой [25, 26].

В отличие от структурного анализа в том виде, в каком он применяется к глобулярным белкам, структурпый анализ фибриля — непрямой метод. Он исходит на предположения определенной модели, а именио постулирования спиральной конфитурации молекулы. Однако, хотя при апализе фибриля и не определяются пеносредственно фазы, этот метод по достоверности приближается к прямым методам.

Спираль явлиется общой и едипственно регулярной конформацией регулярного в отношения химического строения поллые ра. Поэтому само наличие рентгенограммы, т. е. определенных интерференционных максимумов, свидетельствует об осуществлении определенной спиральной (регулярпой) структуры, а не статистического клубка.

На эту важную особенность пифракционных картии от фибриллярных структур обратил внимание Туманян [27], который показал, что рассеяние па спиралях характеризуется геометрией рептгенограммы. В рептгеноструктурпом анализе пефибриллярных (глобулярных) структур информацию о структуре молекул, образующих кристаллическию решетку, несут только интенсивпости рефлексов, в то время как геометрия рентгенограммы содержит информацию лишь об элементарной ячейке. В случае полимера геомстрия рептгепограммы (распределение отражений на пленкс) свидетельствует о структурпых параметрах макромолскулы, поскольку она проходит через большое число ячеек. Симмстрии ячейки п макромолекулярного тяжа оказываются связанными, при этом параметры ячейки становятся и параметрами макромолскулы вследствие того, что рассепвающие центры в соседних ячейках связаны друг с другом специфическими связями.

Таким образом, не привлекая дапных об питепсивности и фазах рефлексов, можно получить информацию, приближающуюся к получаемой прямыми метедами, хотя для этого пужно иметь некие априорные представления об изучаемых фибриллярных структурах (электроппо-микроскопические, физико-химические и др.).

Дифракционная картина, даваемая спиральными нитями, представляет систему слоевых линий с периодом 1/C, где C — период спиральной структуры. Распределение интенсивности па слоевых линиях описывается суммой бесселевских функций, подчиялющихся правилу отбора l = qn + mp, где l — помер слоевой; n порядок бесселевской функции; m — любое целое число; p — число повторяющихся единиц в периоде; q — число оборотов в периоде C. В случае фибриялярных структур характерия полваение нарушений сдяята вдоль сос Z-спирали. При втом резкость рефлексов по мере возрастания l уменьшается, а точечные узлы размываются в штрихи. Только в плоскости l = 0 находятся идеальные точечные узлы.



Рис. 6.21. Дифракционная картина портияжной мышцы лягушки в нокое, экваториальное паправление. Получена В. Б. Савельевым [62].

При интерпретации рентгенограммы мышцы возникают трудпоста, связанные с расщеплением меридиопальных рефлексов за счет интерференции, обусловленной гексагопальной решеткой интей, а также за счет различных типов дезориентации решетки [91].

Дифракционные максимумы рептгепограммы мышцы принято разделять на меридиональные, обусловленные структурой нитей, и экваториальные, обусловленные упаковкой нитей в гексагональную решетку.

В экваториальном направлении рентгенограмма мышцы (рпс. 6.21) содержит ряд малоугловых рефлексов [24, 25, 34, 35, 44], возникающих в результате дифранции на соответствующих сериях плоскостей гексагональной решетки, образуемой толстыми и тонкими нитями в области А-диска [28, 29]. Наиболее сильными из них являются рефлекс от плоскостей (10), где расположены только толстые нити, и рефлекс (11), где расположены и толстые, и тонкие нити.

Между рефлексами 10 и 11 обларуживается промежуточный так называемый Z-рефлекс, который не индицируется в индексах гексагональной решетки толстых и тонких питей. Происхожде-





Рис. 6.22. Рептгенограмма мышцы в состоянии цокоя.

Рис. 6.23. Рептгенограмма мышцы в состоянии ригора.

ние его приписывают расселнию от Z диска и прилегающих к пему топких нитей, унакованных в тетрагональную решенку [30]. Представление о структуре поперечьюго сечения можно получить на основании двумерного Фурье-синтеза, используя экспериментальные значения амилитуд и задаваясь фазами на основании некоторых модельных предпосылок. Более точную виформацию об упаковке питей можно получить, сравнивая экспериментальные даниые (положения рефлексов и их иптенсивности) с теоретически рассчитанными от получевной моделы, постепенно уточияя модель.

Рентгенограммы мышцы в меридиопальном направлении дифракции (рис. 6.22) представляет собой две системы слоевых липий, обусловленных спиральными структурами толстых и тонких иптей [31, 32].

Спотема мнозиновых слоевых липий с основным периодом 429 Å задается спиральным расположением мнозиновых мостиков вокруг остова толстой нити (см. рпс. 6.20, а). Третья слоеевая линия содержит очець сильный меридиональный рефлекс 143 Å, который обусловлен расстоянием между соседними ярусами мостиков вдоль толстой нити. На меридиане помимо сильшых рефлексов 143 и 72 Å регистряруется около 40 относительно слабых рефлексов, обусловленных, вероятно, распределением минорных белков на остове толстой нити [33, 34]. Кроме того, на реитеноограмме мышцы присутствуют «запрещенные» меридиональные рефлексы (например, 214, 107, 86 Å), указывающие на то, что регулярность расположения поперечных мостиков несовершениа [35—37]. Систематические смещения вдоль оси, а также беспорядочные смещения мнозпновых головок проявляются в виде диффузного фона [24].

Дифракционная картина, даваемая топкими нитями, представляет систему слоевых липий с осповным периодом 370 А. Наиболее сильными рефлексами являются меридиональный 27 Å и близмерилиональные 51 и 59 Å, располагающиеся соответственно на 13.7 и 6 слоевых линиях. Топкую пить обычно представляют в виде двух тяжей, сдвинутых относительно друг друга на половину субъединицы, т. е. на 27 Å (см. рис. 6.20, б). Спираль, скрученная из этих двух тяжей, имеет большой шаг 740 А. так что точки перекрещивания проекций тяжей повторяются с перподичностью 370 А, что п дает первую слоевую линию. В такой модели актиновой нити легко прослеживаются сильно закрученные правая и левая так называемые генетические (примитивные) спирали, проходящие через сдвниутые относительно друг друга субъединицы обонх актиновых тяжей. Дифракция на этих различных по шагу спиралях дает шестую и седьмую слоевые липии, соответствующие межплоскостным расстояниям 59 и 51 А.

липия, соответствующие межплоскостным расотоянным ээ и 51 А. Особый интересь в истенее актиповых слосевых представляет вторая слоевал липия (l = 2). Интенсивность максимума при радиальном положения R = 0.22 нм очець чувствительна к смещению пропомпозапового тяжа па топной вити. При том же радиальном положения R = 0.22 им [38] па экваторе зарегистрирован рефлекс, не относящийся к рефлексам гексагопальной решетки, природа его непзвестна. Радпальное положение этого рефлекса может совпадать с положением 9 максимума бессевевской функции. Если предположить, что мпозиновые пяти имеют трехтяжевую спиральную структуру 9/3, то этог рефлекс может быть обусловлеи структурой толстой инти. Тогда интенсивность может быть чувствительна к памененно структуры мостиков нии остова толстой нити [39]. Будем обозпачать временной ход этого экваториального рефлекса как $I_{c}(1)$.

Малоугловая рентгенограмма мышцы претерпевает сильные изменения при переходе ее из состояния покоя в другое статическое состояние – ригор, характервое для мышцы при отсутствии в ней АТФ [28]. Такая мышца становится очень жесткой. На дифракционной картпие от ригорпой мышцы мпозиновые слоевые липпи 429, 214, 143 Å и другие псчезают, меридиональный рефлекс 143 Å в значительной мере ослабевает. Актиновые слоевые липии 370, 59, 51 и 27 Å усиливаются, причем близмеридиональные рефлексы 51 и 59 Å сдвигаются в меридиану (рпс. 6.23). Интепсивности экваториальных рефлексов 10 и 11 перераспределяются: I₁₀ ослабевает, I₁₁ — усиллиается, так что отношение I₁₀/I₁₁ от 2,5 в покое уменьшается до 0,5 в ригоре. Это отпоцение зависит такие от длины саркомера, что согласуется с моделью скользящих цятей, так как при растягивании мышцы уменьшается зоща перекрытия толстых и тонких питей в A-диске (зона гексатопальной улаковки) [28].

Указащное нерераспределение интенсивности рефлексов 10 и 11, означающее наменение заселенности кристаллографических плоскостей (10) и (11), было проинтерпретироваю как результат радиального перемещения мостиков из окрестности толстых нитей в окрестность тонких [40-42]. Такая интерпретация была подтверждена и расчетами карт электронной плотности понеречного сечения мыщцы с помощью Фурье-синтеза [43]. Было показано, что нанболее сильные пики, находлицеся в узлах гексагональной двумерной сетки (мнозиновые нити), в ригоре ослабеванити) усиливаются. Отношение количества материала в актиновых и мнозиновых нитях, оцененное из этих данных, увеличивается с 0,23 в покое до 0,61 в ригоре.

Персраспределение интенсивности рефлексов 10 и 11 в рпгоро интерпретировано как образование стереоспецифического комплекса мнозиновых мостиков с глобулами актина. Эта интерпретация согласуется с экспериментально наблюдаемыми фактами: увеличенисм жесткости мышцы в состоянии ригора; образованием поперечных связей, наблюдаемых в электропный микроскоя; образованием стабильного актомиховинового комплекса в растворе, диссоцинующего в ирисутствии АТФ.

Гипотеза о прикреплении миозпновых мостиков к актиповой спирали в ригоре согласуется с ослаблением интенсивности миозпновых слоевых, усилием актиповых слоевых и сдвигом рефлекса 59 Å к меридиалу (увеличение диаметра спираля, декорированной мостиками). Это интерпретируется как выход мостиков из регистра мнозиповой спирали и встраивание их в регистр активовой.

Первые дифракционные картины стационарно сокращающейся мыщцы (гладкий изометрический тетанус) были получены в режиме пакопления путем синкуронизации вобуждения мыщцы с экспозицией фотопленки, регистрирующей рессеявное пзяучение [44-46]. Необходимая интенскионость рефлексов достигалась за счел многократных стимуляций (до 10 тыс.). При этом приходилось менять более десятка мышц. Суммарная экспозиция составляла несколько часов. В качестве источников рентгеновского излучения использовались трубки с вращающимся амдом.

Рентгенограммы тетанически сокращающейся мышцы также обнаружили эначительные изменения по сравнению с рентгелограммой покоящейся мышцы [44—46]. Было зарегистрировапо ослабление интенсивности мнозиновых словых линий и перераспределение интенсивности рефлексов 10 и 11. Наблюдалось также уменьшение (~ на 13 %) витенсивности рефлекса 143 Å. Аналогичные изменения зарегистрированы на рентгенограмме от ригорной мышцы, одпако были значительно слабее. Так, отношение I_{10}/I_{11} уменьшалось в тетанусе до 0,9. Усиления актиновых слоевых в этих работах не обпаружено.

На основании сходства реитгенограмм от мынц в сокращении и ригоре было выдвипнуто предположение, что в активной фазе сокращения в мыше реализуется структурное состояние, паноминающее ригороподобное состояние, по с меньшим количестном участвующих мостиков (40 % от общего числа). Это предположсние было положено в основу мостикового контактитото механизма сокращения, согласно которому сила развивается благодаря изменешно угла наклона мостика, стереоспецифически прикреиленного к тойкой пити.

Однако наличие стереоспецифического контакта мостика в фазе развития напряжения экспериментально не доказано, не доказано также изменение конфигурации мостиков ов время развития силы. Постулирование перехода мостика от нерпендикулярвой конфигурации и ригороподобной (под углом 45°) подкреплялось электроино-микроскопическими наблюдениями, где мостики регистрировались под углом 45° к оси тонкой пити. Однако в последнее время появились работы, в том числе электронно-микроскопические [47], в которых оспаривается наличие 45градусной конфигурации мостика.

В ряде работ [48—50] теоретическими расчетами выясиялось, как изменецие азимутального и радиального положения мостиков элияет на шитенсивность ячкаториальных рефлексов. Методом двухмерного Фурье-силитеза восстанавливалась проекция поперечного сечения мыщцы в разных состояниях по двум [48, 49] и по пяти [50] рефлексам. Заметим, что привлечение для расчетов данных о пяти рефлексам. [50] (вместо двух) (48, 49] качественного скачка в получаемой информации не обнаружнов. В работе [51] была предпринята попытка теоретически проанализировать влиялие азвилутального и аксиального поворота па интенсивность рефлексов 10 и 11. Расчеты показали, что позменение конфитурации оказывает сильное влияние на интенсивность рефлексов и в первую очередь проявляется в паменении I₁₁, т. е. I₁₁ более чувствителыя к конфитурации мостиков, чем I₁₀.

Роль конфлгурационных изменений в интенсивности экнаториальных рефлексов продемонстриронана также в экспериментах по растяжению ригорпой мышцы [52], в которой число замкнутых мостиков оставалось постоянным, а вариация длины была незначительной (1-2%). Показапо, что в процессе растяжения I_{11} уменьшается обратимо всего на ~10%, а после отпускания мышцы возвращается к исходпому значевию. Интенсивность I_{10} была при этом в пределах ошибия постоянной.

Поведение иптенсивности 2-й актиновой слоевой линии $I_{i=2}(t)$ обусловлено смещением тропомнозинового тяжа на тонкой пити [53].

6.3.3. Режимы сокращения мышцы

В ответ на нервный импульс мембрана, мышечной клетки леноляризуется, при этом повышается проницаемость специализированных мембранных систем — мембрап саркоплазматического ретикулума, сопержащего Ca²⁺. Последнее приводит к выбросу кальция. Увеличение копцептрации Ca2+ (на два порядка) активизирует сократительную систему белков. Выброс Ca2+ - кратковременный процесс, наряду с которым идет активный обратный транспорт Ca2+ в полость ретикулума (секвистрации кальция), и коннентрация элемента вновь падает по пороговой величны 10-7 м. Вызвать активное состояние мышцы можно и электрической стимуляцией. Механический ответ волокна при однократном электрическом раздражении называется одиночным сокращением (рис. 6.24. 1), сокращение мышцы, происхопящее против постоянпой висшией силы. - изотопическим. Если величния впешней силы (Ро) не позноляет мышце укорачиваться, то такое сокрашение называется изометрическим. Чем меньше нагрузка, тем с большей скоростью мышца укорачивается. Скорость изменения длины мышны v и нагрузка P связаны уравнением Хилла [92] $(P+a)(v+b) = b(P_0+a)$, где а н b — константы.

Ири стимуляций мышцы последовательностью импульсов пропоходит суперновиция механических ответов, мышца находится в состоянии максимальной активации, все время развивает силу. Этот рехими называется тетанус. Длительность механического ответа авяпсит от температуры. Так, для мышцы лягушия по мере понижения температуры от 20 до 0 °C опа может увеличиваться от 100 до 500 мс.

Суммация одиночного сокращения (ОС) в тетанус не является линейной, т. е. интеграл (сила × время) для механического от-





Рис. 6.25. Кривые развития изометрической слям P(t) при повгорлой стимуляции мытицы в различимо моменты одиночного сокращения. Время подачи второго стимула указано стрелками. Длительность кадра 10 мс.

Рис. 6.24. Мехапический ответ волокпа па электрическое раздражение.

 изометрическое одиночное сокращение; 2 – сокращение, винципрованное повторным стимулом; 3 – гладкий тетанус. Рис. 6.26. Временной ход интенсивности меридионального рефлекса 143 Å в изометрическом режиме при быстром отпускании в фазо максымума наприжения. × – рыком, ● – ослобождение.

вета от вмпульсов не является суммой из ОС, а азвисит от распределения межнимпульсных интегралов и частоты следования импульсов. Согласно Н. Е. Введенскому, реатврующий субстрат измеияет свое состояние, и следующий импульс, воздействуя на памененный субстрат, паст реакцию, отявста

даст реакцию, отличную от ответа на первый импульс.

Простейшей импульспой носледовательностью является парная стимуляция, которая в зависимости от можимпульспого интервала мышц т вызывает различный моабо t,мс ра стимулов, дающих слятный

механический ответ, принято называть дуплетом. Ответ на дуппет отличается от ОС и по амплитуде, п по форме. Интеграл (сила × время) для дуплета увеличивается больше чем в три раза. Этот прирост уменьшается по мере роста τ , п когда $\tau > 2T_c$ (T_c — время достижения максямума ОС), он может стать меньше суммы двух ОС. В этом случае механический ответ выгиядит в виде двугорбой кривой, второй максимум которой ниже первого.

Изменить харайтер мехайнческого ответа мышцы можно не только вариацией режимов стимуляция, но и мехапическими воздействями на активно сокращающуюся мышцу, меняя величину нагрузки и длину мышцы. Последиие можно менять с различными скоростями, например, быстрый рывок или быстрое ослобождение из-под нагрузки, медленное удлинение нли медленное укорочение. В первом случае сила увеличивается, во втором падает с последующей релакосацией (рис. 6.26). В случае ОС степень релаксации зависит от того, в какой фазе ОС было приложено механическое воздействие.

Режим тетанического сокращения можно менять сипусоидальной модуляцией длины (па 1—3 %) с частотой 5—10 Гц. Это приводит также к сипусоидальному характеру механического ответа.

Разные режимы сокращения активизируют, синхропизируют различные структурные состояния в мышце. Последнее дает возможность выявить корреляции между макроскопическим и молекулярным процессами (или механическим ответом и молекулярными перестройками структуры сократительного аппарата).

1/I143%

*י / p*max

ว่าก

1,01

6.3.4. Обзор экспериментальных работ по исследованию структурных изменений сокращающейся мышцы с высоким временным разрешением

Работы по исследованию структурных изменений в процессе сокращения методикой «дифракционного кино» с использованием СИ впервые в мире проведены на ВЭПП-З в 1975 г. [54. 55]. В настоящее время песколько коллективов исследуют структуру мышцы с высоким временным разрешением при различных режимах сокращения. Обычно регистрируются временные зависимости интенсивности трех групп рефлексов: экваториальных I10(t), I11(t), обусловленных гексагопальной упаковкой нитей, ист, ист, обусловных словных у полименото при R = 0,22 вы, меридиопальных рефлексов $I_{420Å}(t)$, $I_{214Å}(t)$, $I_{145Å}(t)$, расположение и располож расположенных на актиновых слоевых линиях. Исслепчется также изменение ширниы рефлексов и диффузного фона в процессе сокращения. Инже представлены экспериментальные результаты и даны схемы временного хода интенспвиостей дифракционных максплумов относительно крпвых напряжения для различных режимов сокращения: P(t), $I_{11}(t)$, $I_{l=2}(t)$ и $1/I_{400Å}(t)$, $1/I_{214Å}(t)$, $1/I_{143Å}(t), 1/I_{10Å}(t)$. Для простоты анализа временного хода интенсивностей дифракционных макспмумов относительно кривой изотермического напряжения все кривые снормированы на одну высоту. Разделны условно P(t) однночного сокращения па четыре питервала: 1 — фаза развиты цапряжевия, включая ливейный и ченков собласти и папряжевия, включая ливейный участок, где $\frac{dP}{dt}$ = max (заметим, что питервая лишейного участка P(t) совпадает с максимальным уровнем активного состояния и максимальной концентрацией Са²⁺ в саркоплазме); 2 — фаза развития цапряжения с замедлением; 3 — фаза максимального значения P, где $\frac{dP}{dt} = 0; 4 - \phi$ аза расслабления, где тоже имеет смысл выделять точку перегиба, когда скорость фазы быстро увеличивается, и точку, где она экспоненциально затухает. В начальной фазе развития папряжения все кривые I(t) отслеживатот кривую P(t) с различным временным опережением (рис. 6.27-6.29) [57, 58, 61]. Наибольшее опережение зарегистрировано для актиновых рефлексов $I_{50\hat{A}}(t)$ и $I_{t=2}(t)$ (см. рис. 6.27, а, б) [39, 56-60]. Интенсивности этих рефлексов на полувысоте опережают кривую P(t) на 50-60 мс. Уменьшение интепсовности мнозниовых слоевых происходит несколько медленнее, фронт кривых $I_{429A}(t)$, $I_{214A}(t)$ и $I_{14A}(t)$ опережает P(t) на 10-20 мс (см. рис. 6.29, a, 6) [61]. Практически с той жо скоростью меняются экваториальные рефлексы, однако скорость



Рис. 6.27. Изменение спям P(t) п интепсявности I(t) мнозиновых, актиповых п экваторнальных рефисков при тетаническом сокращении мышци. а — мнозиновая своевая 429 Å и 2-я актиновая слоевая; б — экваторнальные рефлексы 10, 11 и 6-я актиновая слоевая 59 Å. Интепсивности I₄₂₉Å (t) и I₁₆(t) спормировани на их макстимальное пзомнение с обратных знаком.



Рис. 6.28. Изменение силы P(t) и интенспвиости рефлексов при одиночном изометрическом сокращении.

а — 2-я актиновая слоевая, б — экваториальные рефлексы 10 и 11.

роста $I_{11}(t)$ больше, чем скорость уменьшения $I_{10}(t)$ (см. рис. 6.27, б) [62-64].

Зпачительные различия I(t) всех рефлексов обнаруживаются во второй и третьей фазах P(t), когда P(t) достигает максимума. Для активной группы рефлексов максимум формируется на 70— 80 мс раньше, чем максимум P(t). Падение питенсивности этих рефлексов начинается очень быстро, до того как P(t) достигиет максимального зпачения. В максимуме же напряжения I(t) актиновых слоев уменьшается на 70 % от своего максимального значения (см. рис. 6.28, a) [56, 65].

Интенсивность на миозиновых слоевых линиях $I_{422\lambda}(t) \ge I_{214\lambda}(t)$ уменьщается по мере развития напряжения синуройно с P(t). Максимумы этих кривых совпадают с максимумами P(t) (см.





« — Г-я мнозиновая слоевая 429 Å и меридиональный рефлекс 214 Å Для улобтяя сравнения ременного хода интенсивност с кривной развития сила P(f). 4 11 / « (f) 214Å (f) спормированы на их мансимальное изменение с обратным знаком. 6 - 1-я мнозиновая слоевая и меридиональный рефлекс [43 Å. Кривал напряжения представлята форме] – P(f).



Рис. 6.80. Экспериментальные кривые временного хода цитенсивности экваториальных рофлексов 10 и 11 при сокращении мышцы в различных режимах,

а — изометрика, б — изотоника, в, в — быстрое отпускание, д, е — повторное стимулирование. рис. 6.29, а) [61]. І_{143Å}(t) имеет сложный характер и будет рассмотрен ниже.

Экстремумы экваториальных рефлексов сдвивуты отпосятельно друг друга, т. е. в ходе $I_{10}(t)$ и $I_{11}(t)$ пот простой зеркальной зависимости. Максимум $I_{11}(t)$ формируется раньше, чем мининум I_{0} . Положение минимума $I_{10}(t)$ совпадает с положением максимума P(t). Максимальное же значение $I_{11}(t)$ совпадает с точкой перетиба на P(t), т. е. с фазой спада активного состояния мышцы (опс. 6.30, а) 148, 491.

Таким образом, на некотором интервале перед Максимумом P(t) обе кривые $I_{10}(t)$ и $I_{11}(t)$ синжаются [64].

При расслаблении мышцы (см. рис. 6.28, б, 6.29, a) кривую P(t) полностью отслеживают только $I_{_{493}}(t)$ и $I_{10}(t)$. При таком расслаблении интенсивности этих рефлексов восстанавливаются тельной степени отстает от кривой P(t) [61, 64]. Падение интенсивности актиновых слоевых линий до своего исходного уровия значительно опережает P(t), так что интенсивности на нолувысоте для $I_{aa}(t)$ и $I_{l=2}(t)$ опережают P(t) на 130 и 90 мс соответственно [56, 65]. Еще более быстрое падение 2-й актиновой слоевой лиции наблюдается у сильно растянутых мышц, когда нет перекрытия толстых и тонких нитей в саркомере [56]. В фазе расслабления продолжается падение I11(t), которое началось еще до того, как напряжение постигло максимального значения. В пекоторых случаях I₁₁(t) падает на 30 % ниже уровия нокоя. после чего релаксирует до уровня покоя к моменту полного расслабления мышцы (см. рис. 6.29, б). Таким образом, кривая $I_{11}(t)$ имеет синусоидальную форму. В фазе расслабления, так же как и в фазе развития напряжения, на некотором питервале $I_{10}(t)$ и $I_{11}(t)$ синхронно меняются, обе растут.

Очень сложную временную зависныость имеет $I_{143A}(t)$ (см. рпс. 6.29, б). Как уже отмечалось, $I_{143A}(t)$ уменьшается по мере роста напряжения в начальной фазе. Затем паблюдается резкий всплеск $I_{143A}(t)$, который достигает максимального зпачения в фазе цаябольшего развития активного состояния мышцы, после чего начинается спад $I_{143A}(t)$, достигающий минимума к концу расслабления. Релаксация $I_{143A}(t)$, и коходному значению происходит со значитыетьной задержкой [68].

Таким образом, I (1) имеет бифазный характер. На писпадающей ветви кривой формируется пик, разделяющий два минимума. Второй минимум значителько пиже первого [61, 67-69]. Высота пика коррелирует с величиной развиваемого папряжения [70]. В некоторых случаях значение интенсивности в инке достигает уровня покоя или даже превышает его [71]. Следует ваметить, что пик I (10). дении мышцы, а также в режиме изотопического одпночного сокращения.

Рассмотрим конкретные структурные наменения в процессе однночного изомотрического сокращения на основе анализа временной заянсимости интенствности рефлексов. Интенсивности актинновых совенадают с ростом концентрации кальция и развитием актиннов состояния мышцы. Это свидетельствует о том, что Ca²⁺, взаимодействуя с системой регуляторных белков, трансформирует структуру топких нитей. Тропомиозпновые тяжи па актинновой инти сдингаются, обуслояливая рост. (d). Трансформируется, но-видимому, и спираль активно, менлется ориентация актинновых мономеров, вызывая изменлет I $_{95}^{0.2}$ (d), чувстви-

Рассмотренные результаты не подтверждают простого стерического блокирования тропомиозипом мест взаплодействия на актиновой сипрали. Падение $I_{i=2}(t)$ происходит до того, как напряжение достигнет своего максимузы [65].

Унеличение $I_{11}(t)$ и падение $I_{10}(t)$ по море развития напряжения указывает на радиальное перемещение мостиков к топким шитим. Падение интенчивности всех мнозивовых слоевых, включая I_{143} (t), свидетельствует о парушении спиральной структуры толотой инти. Это может быть вызвано либо аспихронным движением мостиков, нарушающих спираль, либо их стереоссиецифическим взаимодействием с тонкими интями и выходом из регистра миозиновой спирали. Такое поведение интенствиостей акваториальных рефлексов и мнозиповых слоевых ливий не противоречит контической модени, согласно которой радпальное движение аспихронно работающих спорводит к стереоспецифическому взаимодействию с глобулами актина. В этом случае следовало бы ожидать сшихронного усиления актиновых слоевых (59, 51 Å) и сдвита их к меридиану. Однако последний перегитуву, бы, и ход $I_{syA}^{-1}(t)$ значительно опережает P(t): $I_{syA}^{-1}(t)$ снадает, когда P(t) имеет максимальное значение.

Не укладывается в модель стереоспецифического взаимодействия и бифазный характер $I_{145\lambda}(t)$. Формпрование пика $I_{145\lambda}(t)$ па фоне минимальных значений $I_{425}(t)$. Дормпрование пика $I_{145\lambda}(t)$ па боле минимальных значений $I_{425}(t)$. $I_{214}(t)$ п $I_{10}(t)$ нельзя объяснать в рамках традиционной модели [69]. Основной постулат здесь заключается в том, что развитие слям обеспечивается мостиками, образовавшимы стереоспецифическую слязь с глобулами актина. Другнын словами, предполагается, что при взаимодейстрания толстых и тоннях витей регистр структуры первых перестораньется в регистр вторых, как это наблюдается при переходе мышцы в ригор. Наличие пика $I_{145\lambda}(t)$ опровергает это предположение, мостики, находясь около тонкой пити, сохранялот расселение между соседними ярусами, равное 143 Å. Не прпемлемо

нити к регистру голстой, так как при активации мышцы наблюдается успление $I_{saA}^{(l)}$, что указывает на рост структурированности актиновой спирали.

Таким образом, структуры, взаимодействующие в активном состоянии, сохраняют несопамерныме периоды. Каковы же структурные перестройки мостиков, обусловливающие погасание интеисивности мнозиновых слоевых лиший и усиление меридиональвого рефлекса 143 Å? Хаотическое разупорядочение мостиков или асинхронное встранвание мостиков в структуру тонких питей при-

вело бы к погасапшю всех слоевых линий, включая 143 Å. Усиление истишно меридионального рефлекса на фоле погасания слоевых ливий указывает на искоторые закономерные измерения в конфигурации мостиков. Например, азимутальный поворот мостиков, расположенных около товкой пити, может привести к ослаблению спиравлюто расположения мостиков, но к сохранеию расстояний между ярусами. Правда, азимутальный поворот должен привести к уменьшению зассленности плоскостей (11) и увеличению интенсивности на других плоскостях.

Теоретические модельные расчеты дифракционных картии обнаруживают возможность значительных паменений в соотпошении шитеясняюстей мизоянновых слоевых липий, сокращенных и истинно меридиопальных рефлексов при вариации илотности упаковки толстых и тонких шитей, которая меняет энергию взаимодействия между интями [72].

В модельном расчете [73] было показано, что простой радиальный перенос мостнков от толстых нитей к тонким в гексатопальной решетке саркомера приводит к ослаблению интенсивности всех слоевых, кроме I_{1454} (*i*).

Процесс перестройки мостиков можно рассмотреть и с иной сторовы. Действительно, явление радиального аснихронного нереноса электроиной плотности будет приводить к разрушению снирали каждой толстой шити, вызывая погасание всех мнозиновых

слоевых, в том числе и рефлекса 143 Å, что наблюдается в началькой фазе активации. Процесс радиального переноса мостиков сопряжен с узеличением числа мостиков в области тонкой нигл, где собираются мостики, припадлежкащие трем толстым инглм. Другими словами, в тригональном капале, который образован между тремя толстыми питями, по мере активации мышцы фор-

мируется короткоживущая мезофаза мостиков с периодами 143 Å, представляющая собой дипамическую структуру с временем жизни 30-40 мс. Нессизмеримость периодов динамической структуры и активной спирали делает маловероятным продесс стерического взаимодействия между мостиками и глобулами актина. В этой сяяви обратим влимашие на то, что актиновая спираль декорирована минорным регуляторным белком тропопином, период расположения которого на топкой нити отличается от не риода расположения активой спирайл. Такой характер упаковки тропонина усиливает эффект несопзмеримости в системе взапмолействующих интей [36].

Итак, на основании вышеизложенного следует заключить, что для стерсоспецифического взаимодействия необходимо ввести пекоторос движение мостика (азимутальное, аксиальное) или относительное скольжение интей, которое привенет к увеличению вероятности стереоспецифического контакта.

В асцекте такого подхода к рассмотрению взапмолействия между интями большой интерес представляют эксперименты, в которых к мышие прилагается механпческое воздействие, прпводящее к относительному скольжению нитей. Воздействием может быть быстрое или медленное изменение (однофазное пли периодическое) длины питей на 1-3 % (удлинение или укорочение). При растяжении актиновой линии мышцы сила растет. при укорочении - надает. Рассмотрим поведение питенсивностей различных групп рефлексов.

В ряде работ исследовалось влияние быстрых освобождений от нагрузки на структуру мышцы в одпночном изометрическом сокращении [74]. В ответ на быстрое освобождение от нагрузки сила, развиваемая мышцей, быстро падает, величина последующего восстановления силы зависит от того, в какой фазе цикла одиночного сокращения было приложено воздействие. Если это была начальная фаза развития напряжения или расслабления, сила не восстанавливается. Быстрое освобождение от нагрузки в этом случае как бы ускоряет фазу расслабления. Значительные различия в реакции на смепу режима сокращения проявляют ин-(t), I 214Å (t) практически не меняет своего значения. Очень чувствительна к надению силы $I_{11}(t)$, в то время как $I_{10}(t)$ меняется слабо (см. рис. 6.30, e, z).

Аналогичное поведение I_{143} (t) обнаружено в экспериментах на тетанически сокращающихся мышцах. Как при быстром освобождении мышцы от нагрузки, так и при быстрых рывках зарегистрировано резкое уменьшение І (t), хотя в первом случае напряжение на мышце падает, а во втором растет [75]. При этом наменение других мнозпновых слоевых не зарегистрировано.

Эффект медленного изменения длины (22 % длины мышцы в с) тетанически сокращающейся силы приводит к падению I назависимо от того, удлиняется ли мышца или укорачивается; в первом случае цапряжение растет, во втором — падает (рис. 6.31, а, б) [76, 77]. Ширина рефлекса при этом не меняется вдоль мериднана, вдоль слоевой липпи протяженностью рефлекса 143 А растет по мере развития напряжения, при растяжении п после пего. Это указывает на то, что степень упорядочепности

135

вдоль нити сохраняется. Однако область упорядоченности при



Рис. 6.31. Влияние медленного паменения длины тетанически сокращающейся мышцы на напряжение P(t) и интенсивности меридионального рефлекса I .

143Å

Мыщца растягивалась пли укорачивалась с постоянной скоростью на 7 % от исходной величины; а — растяжение, б — отлускание.

1,0 CU.R. 0 TH. CD. 0,5 ٥ 1,0 Интенсивность, отн.ед. 0,5 0,25 0 1,0-0,5 1,0 -0.8 t,c 0 0.4 1,2

Рис. 6.32. Схема паменения силы и интепельности рефлексов под влиянием синусондального изменения длипы тотанически сокращающейся мышны.

а — сила; б — меридиональный рефлекс, 143 А; в — экваториальные рефлексы 10 и 11.

этом как бы сужается в поперечпом направлении. Необходимо отметить, что І ., (t) не отслеживает изменение длины, она уменьшается прп активации и восстанавливается при расслаблении. Обращает на себя внимание тот 143Å (t), выфакт, падение ЧTO 1 званное изменением длины, всегда больше падения $I_{43A}^{\circ}(t)$ прп активации мышцы. Самое же низ-I _____ (t) регистри-ROE значение

руется при расслаблении мышцы. Величина, до которой падает I 143Å (t) при расслаблении, по-видимому, является характерной для данной мышцы, независимо от того, в каком режиме она сокращалась. Противоположный эффект оказывает медленное измепение дляцы нити на актиновые рефлексы $I_{sol}(t)$ и $I_{sil}(t)$ [64]. В режиме растяжения, когда сила растет, интенсовность рефлексов уменьшается. При этом полуширина рефлексов не меняется, т. е. не происходит дезориентации структуры вдоль нити.

Интонсивность экваториального рефлекса I₁₁ в режиме растялкения уменьшается, при этом паменение I₁₀ незначительно [89]. Мед.лениюс укворочение мышцы не влявет на I₁₀ и I₁₁ [77].

Сипусондальная модуляция дляны тетанически сокращающейся мышцы приводит к сплусондальному характеру механического ответа (рис. 6.32, а.6) [78-80] С уменьшением дляны сила надает, с увеличопнем — растет. При этом характерио, что уровень осцияляции P(t) выше, чем изометрическое напряжение. Рассмотрим изменение интенсивностей $I_{10}(t)$ и $I_{11}(t)$, $I_{122}(t)$

Рассмотрим изменение интенспвиостей $I_{10}(t)$ и $I_{11}(t)$, $I_{143}(t)$ и $I_{214Å}(t)$. Известно, что при развитни теганического напряжения $I_{11}(t)$ растет, а $I_{10}(t)$ падает. В случае же модуляции механического ответа изменением длины наблюдается прогивоволожный эффект. С ростом напряжения $I_{11}(t)$ падает, а $I_{10}(t)$ уреличивастоя. Амилитуда изменений $I_{11}(t)$ влачительно больше, чем $I_{10}(t)$. При этом максимум амилитуды $I_{11}(t)$ вепревышает ее значения в состоянии изометрического тегаруса.

Сппусондальные пэменения $I_{143\lambda}(t)$ и $I_{11}(t)$ сходны, на паменение длины $I_{143\lambda}(t)$ обларуживает нелинейный характер ответа. Внутри каждого цикла нэменения длины имеются два пика и две впадины на $I_{143\lambda}(t)$ (I [80]. Максимальное значение близко к эначение падает ниже уровия падения $I_{143\lambda}(t)$ в фазе развития тетануса. Однако следует подчеркнуть, что при расслабления мышцы $I_{143\lambda}(t)$ меньшается гораздо сильнее, т. е. побые мехапизмы воздействия на мышци и стодилога даелия, которое досигнает 25 % от уровия паком. Интерсию отметить, что амилитуда осцилляций зависит от температуры и умельшается с ее повышением [79]. Интегральная ширина рефлекса 143 Å вдоль меридана и перпендикулярно ему пе меняется, т. е. изменение $I_{143\lambda}(t)$ не вызвано сразонентацией структуры толстой инти [78].

Свиусопдальное изменение длины мышцы незначительно влияет на I _______(t), которая осциллярует в противофазе с I _______(t). Последнее может свядетельствовать в пользу того, что по мере упорядочения структуры с периодом 143 А пертурбация мостиков спиральной структуры уменьшается.

При модуляции длины изменение интенсивности актиновых слоевых I () и I () () незначительно, хотя при развитии те-

тапического напряжения опо достигает 35 и 30 %. соответственно. Изменение интенсивности актиновых слоевых линий происходит в противофазе с $I_{143Å}(t)$, при укорочении мыницы регистрируется пезначительный рост $I_{59Å}(t)$. Изменения $I_{51Å}(t)$ совсем незначительны.

Таким образом, суммируя результаты экспериментов, связанных с различными воздействиями на тетанически сокращающуюся мышцу, можно сделать следующие заключении. Любые механические воздействия, приводящие к изменению длины мышцы п вызывающие изменение механического отвста, вызывают измепения дифракционной картины мышцы. Интенсивность рефлекса 143 А резко падает, другие мнозиновые слоевые ночти не меняются. Наблюдается также уменьшение I11(t) на фоне незначительного изменения I10(t). Такой характер изменений может быть питерпретирован следующим образом. Изменение длины на 1-3 % приводит к проскальзыванию интей на расстояние ~100 А. Относительное двяжение интей повышает вероятность взаимодействия комплементарных мест связывания. Результатом проскальзывания оказывается встрапвание мнозиновых мостнков в регистр актиновой спирали. Процесс встраивания нарушает акспальную п азпмутальную конфигурацию мостиков. Это проявляется в падении $I_{143A}(t)$ и $I_{11}(t)$. $I_{10}(t)$ оказывается гораздо менее чувствительной, поскольку события происходят в области тонкой нити. В присутствии АТФ в активной мынице эта связь быстро распадается и мостики восстанавливают свою структуру. Малое время жизни структуры, декорированной мостиками, проявится в незначительном увеличении актиновых слосвых, а пля случая одиночного сокращения вообще может быть не зарегистрировапо. Для этого требуется, по-видимому, методика с гораздо большим временным разрешением. Мостики после связи с актином приобретут различную конформацию, время релаксации их к исходному состоянию будет отражаться во времени восстановлепия $I_{1434}(t)$. Незначительное изменение $I_{1434}(t)$, возможно, объясняется тем, что температура, при которой проводился эксперимент, была высокой (17°С) [81], при такой температуре изменения I (1) также незпачительны [79]. Необходимо обратить впимание на то, что при измецении длины мышцы происходит уменьшелие $I_{133A}^{\circ}(t)$ и увеличение $I_{55A}^{\circ}(t)$, что коренным образом отличается от фазы развития напряжения, когда интенсивность обоих рефлексов становится выше, чем в состоянии покоя. Противоположный характер измецения I_{143} (t) и I_{53} (t) характерен для ригора.

Определяющая роль динамической структуры — короткоживущей мезофазы с периодом 143 Å — показана в серии экспериментов, где для активации мышцы используется париая стиму-



Рис. 6.33. Времениби ход интепсивности меридиопальных рефлексов 214 Å (a) и 143 Å (б) при изоторпом стимулировании (точки) и быстром отвусканий (сплощива) (a).



ляція (рис. 6.33) [83]. При повторной стимуляции мышцы, находящейся в состоянии одиночного сокращения, величина механического ответа сильно возрастает. Как видно из рис. 6.33, одновременно регистрируется резкое увеличение $I_{143A}(t)$. Интенсивности других мнозиновых слоевых при этом почти не медяются. Поведение $I_{16}(t)$ и $I_{11}(t)$ также меняется, однако эти наменения пелинейны, они значительно меньше, чем изменения P(t)[84]. Следующий вывод можно сделать на экспериментов по парному стимулированию. Увеличение силы при повторной активации мышцы сопровождается ростом $I_{143A}(t)$. В этих экспериментах отчетливо видно, что развитие силы сопровождается формирого стихула оказалось возможным выянить эту корреляцию, так как при одиночном сокращении рост $I_{143}(t)$ маскирован паде-



Рис. 6.35. Изменение поведения силы и интенсивности экваториальных рефлексов 10 и 11 при утомлении одной и той же мышцы в процессе изометрического сокращения.

нием интенсивности всех мнозиновых слосвых, которое вызывается уходом мостиков из области толстой нити.

Исследования структуры перестроск в утомленных мышцах [86, 87] обнаружили значительные изменения в ходе I(t). На I нечезает плк динамической структуры (рис. 6.34). Пролонгируются фаза расслабления и длительность релаксации структуры к исходному уровню. Это особенно ярко проявляется на кривых $I_{10}(t)$ п $I_{11}(t)$, представленных на рис. 6.35. По мере утомления не только уменьшается амплитуда, по и менястся форма кривых I(t), особенно в фазе релаксации. При сильном утомлении структура вообще не возвращается к исходному состояцию. Она как бы «замораживается» в некоторой измененной конформации, так что следующий цикл сокращения (а мы суммируем информацию сотни циклов) застает структуру в состоянии, отличном от состояния покоя, и, по-видимому, часть активного потенциала мышцы расходуется на релаксацию структуры. Это должно приводить при суммировании информации большого числа циклов к артефактам. Например, в утомленных мышцах наблюдается инверсия хода экваториальных рефлексов: I11(t) вместо роста обнаруживает падение, а I10(t), напротив, рост [87]. Предположение о том, что пля релаксации структуры необходим определенный потенциал активности, подтверждается в экспериментах с повторным стимулированием утомленной мышцы [87, 88]. Если последнюю стимулировать дуплетным импульсом, то наблюдается полное восстановление в ходе $I_{10}(t)$ и $I_{11}(t)$. Вероятно, дуплетное стимулирование пролонгирует активное состояние мышцы таким образом, что структурные изменения совершают полный цикл активации и релаксации.

* * Анализируя многочисленные экспериментальные даиные по усовленню корреляций между P(t) и интенсивностями всех

тановлению корреляций между P(t) и интенсивностями всех групп рефлексов, можно сделать следующее заключение. Развитие напряжения сопровождается структурными изменениями толстых и тонких питей, а также переносом электронной плотно-

сти от первых ко вторым. В активной мышие формируются короткоживущие упорядоченные мезофазы. Напряжение развивается при взапмодействии структур, пмеющих песоизмерные периоды. После полного расслабления мышцы регистрируется пастактивационное состояние структуры, отличающееся от состояния цокоя.

Процесс релаксации структуры к исходному уровню требует определенного активного состояния мышцы. Утомление мышцы замедляет процесс редаксации.

Приведенные результаты не могут быть объяснены в рамках мостиковой контактной модели. Для интерпретации пеобходимо представление о динамической структуре, которая формируется в интерьере гексагональной решетки и пе является генетически самостоятельной. Эта структура формеруется мостиками трех различных нитей в момент сокращения, время ее жизны сотая доля секунды.

Таким образом, в качестве функциопально значимого элемента следует рассматривать пе пару обособленных питей, а тригональный канал жицкокристаллического ансамбля, который образован фибриллами с различными перподами и симметриями. В результате разнального пвижения мостиков система выходит из равновесия, появляются нескомпенспрованные сплы в продольном направлении. В силу полярности структуры любой вектор спл лриведет к однонаправленному движению тонкой нити вдоль оси мнозпиового канала. При движении система становится равновеспой. Принции линамического сопряжения симметрий может определять механизм биологической подвижности в разных ее проявленнях 193].

Сократительные системы, по-видимому, напоминают системы с перемешпванием, и, возможно, подобные представления окажутся плодотворными для понимания механизма биологической подвижности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Gerard N. // J. Phys. E: Seient. Instr. 1974. V. 7. Р. 509-510. 2. Болдырев В. В., Толочко Б. П., Шеромов М. А. п др. // Докл. АН СССР. -
- Болдмрев В. В., Толочко Б. П., Шеромов М. А. п. др. // Дон. АН СССР. 1981. Т. 255, № 3. С. 1127. 1129.
 Шалкин В. Л., Толочко Б. Н. // Тр. VI Всесоюз. совеш, по пспользова-нию спихорторопого получения. Новосибирск, 1986. С. 120-121.
 Толочко Б. П., Маслий А. М., Ляхов Н. З. // Изэ. СО АН СССР. Сер. хим. паук. 1985. Дин. 1, № 2. С. 54-58.
 Тапонов Ю. А., Толочко Б. П., Ляхов Н. З. Шеромов М. А. // Тр. VI Не-сово совет с ликара в развила в дитурстверанов М. А. // Тр. VI Не-сово совет. С. 100 -
- Γαποιοπ Ю. А., Τοπουικο Б. Π., Ляхов Н. З., Шеромов М. А. // Τρ. VI Есс-союз. соени, по непользованию синхротроплого излучения: СИ-84.— Но-посибирск, 1986.— С. 121.—123.
 Ляхов Н. З., Маслий А. И., Толочко Б. П., Шероков М. А. // Изв. СО АН СССР. Сер. хим. паук..—1986... Вып. 6, № 1.— С. 54.—59.
 Lyakhov N. Z., Mytnichenko S. V., Tolochko B. P. et al. // Nucl. Instr. Meth... 1986.— V. A246. N 1/3.— P. 776—777.
 Шолучаров Ю. М. // Электрохимия... 1966.— Т. 2, № 4.— С. 937.—942; 1968.— Т. 4. № 5.— С. 568—571; 1977.— Т. 13, № 6.— С. 878—883.
 Fleishman M. // J. Electroanal. Chem.— 1983.— V. 150.— P. 33—42.

- 10. Полукаров Ю. М., Семенова З. В. // Электрохнипя.- 1966.- Т. 2, § 1.-C. 183, 184.
- Халдеев Г. В., Гогель В. К. // Флзика металлов п матерпаловедение.— 1984.— Т. 54, вып. 3.— С. 535—542.
- 12. Кулппанов II. Г., Скринский А. П. // УФН.- 1977.- Т. 122, вып. 3.-C. 369—418.
- 13. Ляхов И. З., Толочко Б. П. и др. // Отчет о работах по использованию спихротропного излучения в Институте ядерной физики СО АН СССР .-Новосибирск, 1981.- С. 33-34.
- 16. Возника А. А. // ИВХО им. Мендолеева. 1983. Т. 29. С. 84 89. 15 Вазина А. А. // ИВХО им. Мендолеева. 1983. Т. 29. С. 84 89. 15 Вазина А. А. // Келезиная Л. А., Лукина В. И. // Молекулярная и кисточ-ная биофизика. М., 1977. С. 53 72.
- ная опоорязика.— м., 1977.— С. 53—72. 16. Пальов J., Huxley H. E. // Symp. Soc. Exp. Biol.— 1955.— V. 9.— Р. 228. 17. Huxley H. E., Hanson J. // Nature.— 1954.— V. 173, N. 4412.— Р. 973—976. 18. Hanson J., Lowy J. // J. Mol. Biol.— 1963.— V. 6.— Р. 46—60. 19. Huxley H. E., Brown W. // Did.— 1967.— V. 30.— Р. 383—434. 20. Lymon R. W., Taylor E. W. // Biochemistry.— 1971.— V. 10.— Р. 4617—4026. 21. Gargely J. // Basic Res. Cardiol.— 1980.— V. 75.— P. 18—25. 22. Taylor K. A tayoe I. A // J. J. Biol. 1963.

- Grangey * *g* haste free. Cartuin 100 110 110 110 210
- 586.
- Туманян В. Г. // Молскулярная биология. Итоги науки и техники.— М.: ВИНИТИ, 1973.— Т. 2.— С. 132—179.
- 27. Huxley H. E. // Cross-bridge mechanism in muscle contraction .- Tokyo, 1979.- P. 391-405.
- 28. Squire J. M. // Thestructural basis of muscular constraction .- N. Y.: Plenum Press, 1981 .-- P. 276-300.
- Luther P. K., Squire J. M. J. Mol. Biol. 1980. V. 141. P. 409-439.
 Maeda Y. J. Nature. 1983. V. 302. P. 69-72.
- 31. Yu L., Lymn R. W., Podolsky R. J. // J. Mol. Biol.- 1977.- V. 115.- P. 455-464.
- 32. Rome E. // Cold Spring Harbor Symp. Quant. Biol.- 1972.- V. 37.- P. 331-339.
- Kensler R. W., Stewart M. // J. Cell. Biol.- 1983.- V. 96.- P. 1797-1802.
 Yagi N., Ito M. N., Nakajima II, et al. // Science.- 1977.- V. 197.-
- P. 685-687.

- Lowy J., Poulsen F. R. / J. Mol. Biol.— 1987.— V. 194.— P. 595—600.
 Parry D. A. D., Squere J. M. / Ibid.— 1973.— V. 75.— P. 33—55.
 Wakabayashi K., Tanaka H., Kurthana J. et al. / Photon factory activity report. – Japan: KEK, 1986. – P. 300. 38. Kress M., Huxley H. E., Faruqi A. R., Hendrix J. // J. Mol. Biol. – 1986. –
- V. 188.- P. 325-342.
- 39. Elliot C. F., Lowy J., Worthington C. R. / J. Mol. Biol.- 1963 .- V. 6 .-P. 295-305.
- 40. Elliot G. E., Lowy J., Milmann B. M. // Ibid.- 1967.- V. 25.- P. 31-45.

- Linov G. E., Lowy J., miniman B. an. / 1010-1107.-V. 25.-P. 31-45.
 Huxley H. E. // Bid. 1968.-V. 37.-P. 507-520.
 Haselgrove J. C., Huxley H. E. // Ibid.-1973.-V. 77.-P. 549-658.
 Huxley H. E., Brown, Holmes K. C. // Nature.-1965.-V. 206.-P. 1358.
 Huxley H. E., Kirchnene M. W. // I. Cell Biol.-1973.-V. 86.-P. 212-234.
 Haselgrove J. C., Stewart M., Huxley H. E. // Nature.-1976.-V. 261.-P. 606-608.
- 47. Lymn R. W. // Ibid.- 1975.- V. 258.- P. 770-772. 48. Yu L. C., Steven A. C., Neylor G. R. S. et al. // Biophys. J.- 1985.- V. 47.-P. 311—321.
- 49. Lymn R. M. // Biophys. J.- 1978 .- V. 21 .- P. 93-98.
- Tanaka H., Sugi H., Hashizume H. / Proc. 2nd intern. symp. cross-bridge mech. muscle contract. seattle, Wash., 1982.-N. Y., 1984.-P. 85-93.

- 51. Хилл А. Механика мышечного сокращения.- М.: Мир. 1972.- 183 с.
- 52. CERN Cour.- 1977.- V. 17.- P. 62-64.

- Dalini Co.M. Moscivyran Guororin. 1976. Τ. 8, ч. 2. C. 242-307.
 Maxley H. E. # 5th Intern Biophys. Cong. Abstracts. 1975. P. 553.
 S. Basuna, A. A., McSurang, J. A., Maromuin A. M. ut g. M. Enofasuka. -Mainti, T. M. C. Karada, K. K. Bordas, J. et al. // Nature. - 19(7). - 7.
 Maxley H. E., Paragi A. R. Bordas J. et al. // Nature. - 1980. - V. 284.
 T. Lixely H. E. S. Burdons, R. M. Faragi A. R. et al. // Proc. Nat. Acad. Sci.

- Huxley H. E., Shmmöns R. M., Faragi A. R. et al. // Proc. Nat. Acad. Sci. USA.- 1981.- V. 78. P. 2397-2301.
 Wakabayashi K., Tanaka H., Amemiya Y., Fujishima A. et al. // Biophys. J. 1985.- V. 74. P. 837-850.
 Wakabayashi K., Tanaka H., Kurihara J. et al. // Photon factory activity report.- Japan: ISK, 1986.- P. 301.
 Wakabayashi K., Tanaka H., Kurihara J. et al. // Dhoton factory activity report.- Japan: ISK, 1986.- P. 301.
 C. Kachayashi K., Tanaka H., Kurihara J. et al. // Dhoton factory activity report.- Japan: ISK, 1986.- P. 301.
 C. Rauenco B. E. // Endoptanua.- 1986.- T. 31-C. 1027-1032.
 Rauna A. A. // Tp. Boccomp. (1982.- C. 171-107.
 Vazina A. A. // Nucl. Instr. Meth.- 1987.- V. A261.- P. 200-208.
 Yazina A. A. // Nucl. Instr. Meth.- 1987.- V. A261.- P. 200-208.

- 64. Yagi N., Matsubara I., Amemiya Y. // Photon factory activity report .--Japan: KEK, 1986.- P. 297,
- 65. Вазина А. А., Волькенштейн М. В., Гаджиев А. М. и др. // Докл. АН CCCP -- 1984.- T. 274.- C. 941-946.
- 66. Вазина А. А., Гаджнев А. М., Герасимов В. С. и др. // Тр. Всесоюз. совещ, по использованию синхротронного излучения.- Новосибпрск, 1981.- C. 20-30.
- L. C. 20-30.
 R. Kress M. et al. // J. Mol. Biol. 1982. V. 158.
 Huxley H. E., Farugi A. R., Kress M. et al. // Science. 1987. V. 158.
 Amemiya Y., Wakabayashi K., Tanaka H. et al. // Science. 1987. V. 237.
 Lowy J., Poulsen F. R. // J. Mol. Biol. 1984. V. 174. P. 239-247.
 P. Agayana A. M., Baanna A. A. // Monexyanp. Guotorum. 1984. T. 18. -
- C. 792-797.
- 71. Amemiya Y., Tameyasu T., Tanaka H. et al. // Proc. Japan Acad .- 1980 .-V. 156, Ser. B.— P. 235—240.
- 72. Huxley H. E., Simmons R. M., Farugi A. R. et al. // J. Mol. Biol.- 1983 .-V. 169.— P. 469—506.
- 73 Yagi N., Matsubara I. // Biophys. J.— 1984.— V. 45.— P. 611—614. 74. Tanaka II., Iwamoto H., Kobayashi T. // Photon factory activity report.— Japan: KEK, 1986.— P. 291.

- Wakabayashi K., Tanaka H., Kobayashi T. et al. // Photon factory activity propring the state of the state of

- V. 49.- P. 581-584.
- 83. Wakabayashi K., Tanaka H., Ueno Y. et al. // Photon factory activity report.— Japan: KEK, 1986.— P. 316.
- 84. Вазина А. А., Гаджиев А. М., Сергиенко П. М. и др. // Тр. VI Всесоюз. совещ, по использованию синхротропного излучения СИ-84.- Новоспбпрск, 1986.- С. 136-139.
- 5. Тапака II., Кобрузакії Т., Аменніуа Y., Wakabayashi K. // Biophys. Chem.-1986. V. 25. Р. 161–108. 86. Сергистико II. М. Примененко сшихротропного излучения в исследова-
- нии структуры мыницы в различных режимах одиночного сокращения: Автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук.- Тбилиси, 1988.- 16 с.
- 87. Вазина А. А. // Новые физические методы в биологических исслеповапиях. — М.: Наука, 1987. — С. 96—115. 88. Вазния А. А. // УФН. — 1979. — Т. 128. — С. 182—183.

Введение	3
Глава 1	
Основные физические свойства синхротронного излучения	5
1.1. Исторический обзор	_
1.2. Осповные своиства излучения электрона, движущегося по констрания своиства	6
1.3. Излучение из ондуляторов и вигтлеров	14
1.4. Специализированные накопители для генерации СИ	15
Список литературы	16
Глава 2	
Аппаратура для дифрактометрии синхротронного излучения	17
2.1. Мопохроматизация излучения	-
2.2. Фильтрация высших гармоник .	19
2.3. Особенности рептеновской оптики при работе с СИ	21
ние пучка СИ изогнутым консталлом в горизонтальной	
цлоскости	23
2.5. Фокусировка пучка СИ в вертикальной плоскости зеркалом	24
26 Учет поляризации СИ при выборе оптимальной геометрии	41
эксперимента.	26
Список литературы	27
Глава З	
Координатные детекторы рентгеновского излучения	28
	39
	00
Автоматизация экспериментов с использованием синхротронного излучения	40
4.1. Используемые ЭВМ и программное осеспечение	41
с элементами экспериментальных станини	50
Список литературы	53
Глава 5	
	54
	0.1
5.1. Станция малоугловой дифрактометрии с высоким времен-	
5.2. Сколостной пифрактометь синхвотронного излучения нако-	_
пителя ВЭШП-3	78
5.3. Скоростной дифрактометр синхротронного излучения цако-	0
ПИТСЛЯ ВЭПИ-4.	19
структурных исследованиях	90
Список литературы	96
F	
применение дифрактометрии с использованием синхротронного из-	99
6.1. Дифрактометрия СИ в химии твердого тела	
0.2. Исследованые структуры электрохнымических осадков в про- пессе электролиза.	111
6.3. Исследование структурных изменений мышцы в процессе	
COVDEMANUE C BLICOVER BRONOHULIN DESDOMONION	117
Companyers of Successful Spearchick paspellenness	414
Научное издание

Болдырев Владимир Вячеславович <u>Ляхов</u> Николай Захарович <u>Толочко</u> Борис Петрович и др.

ДИФРАКТОМЕТРИЯ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Редактор издательства Е.Н. Казарезова Художественный редактор М.В. Кручинина Художинк Е.Ф. Гришин Технический редактор А.В. Сурганова Корректоры С.В. Блинова, Г.Д. Смоляк

ИБ № 34565

Сдано в набор 02.02.89. Подписано к печати 15.09.89. МН-01666. Формат 60х90¹/₁₆ Бумага ки.-журнальная. Обыкновенная гариитура. Высокая печать. Усл. печ. л. 9. Усл. кр.-отт. 9,4. Уч-над. л. 10,3. Тираж 1000 эко. Заказ № 569. Цена 2 р. 10 к.

Ордена Трудового Красного Знамени издательство "Наука", Сибирское отделение. 630099 Новосибирск, ул. Советская, 18. 4-я типография издательства "Наука", 630077 Новосибирск, ул. Станиславского, 25.