

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА



С 344.1п

В-754

1315/4-76

14 - 9451

Б.И.Воронов, И.Гладких, Н.И.Лузанов, А.Б.Кунченко,
Ю.М.Останевич, И.Хорват, Л.Чер

СПЕКТРОМЕТР ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ
МАЛОУГЛОВОГО РАССЕЙЯНИЯ НЕЙТРОНОВ
ПО МЕТОДУ ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА

1976

14 - 9451

Б.И.Воронов, И.Гладких, Н.И.Лузанов, А.Б.Кунченко,
Ю.М.Останевич, И.Хорват, Л.Чер

СПЕКТРОМЕТР ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ
МАЛОУГЛОВОГО РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ
ПО МЕТОДУ ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА



Ранее мы провели анализ возможностей исследования малоуглового рассеяния нейтронов по методу времени пролета ^{1/} и основных характеристик спектрометра для этих исследований ^{2/}. Данная работа посвящена описанию первых экспериментов, подтверждающих работоспособность метода и основных технических решений, использованных при его реализации.

1. Конструкция спектрометра

Спектрометр малоуглового рассеяния нейтронов располагается на пучке №5 реактора ИБР-30. Размещение основных узлов спектрометра показано на *рис. 1*. Коллиматоры К1 и К2 задают размеры и расходимость пучка нейтронов, падающих на образец. К1 имеет отверстие размерами 50 x 130 мм², К2 - 18x95 мм². К1 размещается на расстоянии 7,7 м от замедлителя в биологической защите реактора. К2 расположен внутри вакуумного нейтроновода на расстоянии 22 м от К1. Его положение может быть юстировано в направлениях, перпендикулярных пучку в пределах ±100 мм с точностью лучшей, чем 1 мм без разгерметизации нейтроновода.

В конструкции коллиматоров предусмотрены меры, исключющие появление нейтронов, зеркально отраженных от стенок канала коллиматора или нейтроновода под малыми углами.

Перед коллиматором К2 расположен монитор прямого пучка. Непосредственно за коллиматором К2 располага-

ется камера образцов, сообщающаяся с атмосферой. В ней установлен механизм смены образцов, позволяющий дистанционно вводить в пучок один из четырех возможных образцов. Держатель образцов снабжен каналами для циркуляции теплоносителя, что позволяет регулировать температуру образцов с помощью внешнего термостата в пределах $-5 \div +100^\circ\text{C}$. Камера образцов допускает герметизацию, продувку сухим воздухом или благородным газом, что необходимо для избежания конденсации влаги на образцах при использовании низких температур.

Кюветы для исследования растворов изготовлены из оптического кварца. Их линейные размеры несколько больше размеров коллимированного пучка. Толщина рабочего объема составляет ~ 1 мм для водных растворов, объем одной кюветы - около $2,5 \text{ см}^3$. Механизм смены образца допускает центровку рабочего образца относительно пучка падающих нейтронов с точностью $\pm 0,5$ мм. Окна, отделяющие камеру образцов от вакуумированного объема нейтронвода, выполнены из ванадиевой фольги толщиной $0,2$ мм.

За образцом располагается камера детекторов, конструктивно выполненная из стальной трубы $\phi 800$ мм. В ней размещены рельсовый путь, подвижная тележка с детекторами нейтронов и механизм транспортировки кабеля, связывающего детекторы с остальными частями установки. Вакуумная труба с детекторами имеет полную длину около 22 м, в ее конце располагается ловушка прямого пучка.

Детекторы могут располагаться на расстоянии до $12,8$ м от образца. Шкала, связанная кинематически с приводом тележки, позволяет отсчитывать положение детектора с точностью $0,5$ см. Для щелевой геометрии, реализованной в настоящее время, в качестве детекторов применяются пропорциональные счетчики типа NWI-52 /производство ПНР, 600 мм $\text{В}^{10}\text{F}_3$, размеры чувствительного объема $\phi 21$ мм, $h = 300$ мм/. Счетчики расположены вертикально в плоскости, перпендикулярной пучку, с шагом по горизонтали 23 мм. Центральная часть плоскости детектирования размером 102×350 мм², через которую проходит прямой пучок, не занята ни счетчиками, ни какими-либо конструкционными материалами.

Такая конструкция позволяет весьма эффективно снизить фон от прямого пучка в области детекторов. Помимо описанных детекторов на тележке размещается счетчик нейтронов типа СНМ-13 / $\phi 8 \times 85$ мм²/, который может перемещаться в пределах окна для прямого пучка. Положение счетчика известно с точностью $0,2$ мм. С помощью этого счетчика производится измерение профиля прямого пучка и проверка соосности центра пучка и центра симметрии детекторов. Юстировка положения пучка производится с помощью коллиматора К2. На тележке располагается также часть детекторной электронной аппаратуры, размещение которой целесообразно осуществить вблизи счетчиков.

Конструктивно узел образца оформлен в виде участка стальной трубы $\phi 800$ мм, $L = 2$ м, установленного на рельсах, что позволяет весь узел убрать из пучка. Для мелкого ремонта в камеру детекторов имеется доступ через вспомогательный люк. В рабочих условиях на всем протяжении трассы пучка нейтронов поддерживается вакуум $p < 0,1 \text{ Тор}$. Камера детекторов на всем протяжении окружена бетонной защитой толщиной 50 см. Фоновые условия на установке достаточно хорошие. Отношение интенсивностей для трех ситуаций - /с образцом /кювета с водой/, без образца, без пучка/- соответственно равны $1 : 0,1 : 0,005$. При входном коллиматоре К1 с размерами 50×130 мм² и мощности реактора 15 кВт средний поток нейтронов на образце составлял $0,9 \cdot 10^5 \text{ с}^{-1} \text{ см}^{-2}$ по активации золота/.

2. Электронная аппаратура

Электронная аппаратура спектрометра функционально делится на аппаратуру управления образцами, спектрометрическую аппаратуру и запоминающее устройство.

Эксперимент в настоящее время ставится таким образом, чтобы в пучке поочередно находились два образца - исследуемый раствор и растворитель. Аппаратура

управления образцами задает длительность замера с одним образцом, прекращает накопление данных на время замены образцов и коммутирует адрес запоминающего устройства в соответствии с признаком образца, находящегося в пучке. В качестве задающего генератора для таймера и для синхронизации логических операций используются стартовые сигналы от реактора. Тем самым обеспечивается коммутация всех устройств в те моменты, когда не происходит регистрации рассеянных нейтронов.

Спектрометрическая часть аппаратуры состоит из одинаковых для всех счетчиков эмиттерных повторителей, предусилителей, усилителей и дискриминаторов. Эмиттерные повторители и предусилители выполнены с учетом необходимости работать в условиях вакуума. Рабочее положение детектора находится в участке нейтронновода, проходящем вне помещений, поэтому эти же устройства подвержены достаточно сильным суточным и сезонным колебаниям температуры $\div \pm 30^\circ \text{C}$. Аппаратура удовлетворительно работает в этих условиях.

Сигналы, поступающие от счетчиков, расположенных симметрично относительно пучка нейтронов, объединяются перед основными усилителями. В качестве основных усилителей и дискриминаторов используются приборы КФК1-НК-213 /производство ВНР/. Для передачи сигналов с дискриминаторов в запоминающее устройство используются 4 кабельные линии совместно с кодировщиком номера детектора. В качестве запоминающего устройства используется многоканальный анализатор импульсов АИ-4096 в режиме анализа времени пролета с переменной шириной канала. В эксперименте одновременно могут участвовать до 8 детекторов. 256 каналов памяти, отведенные на один детектор /один угол рассеяния/, разбиты на 4 группы по 64 канала, имеющие различную ширину канала. В описываемых ниже опытах ширины каналов были избраны равными 128, 256, 512 и 1024 мкс, причем ширина канала увеличивалась с увеличением времени пролета. Такая организация анализа позволяла охватить диапазон длин волн $0 \div 11 \text{ \AA}$ при умеренном объеме памяти запоминающего устройства и с достаточным энергетическим разрешением.

3. Эксперименты с растворами белков. Обработка результатов

Пусть $N(\lambda)$ - непосредственно измеряемая по методу времени пролета зависимость числа отсчетов какого-либо детектора от времени пролета /длины волны нейтрона/. Легко записать для растворителя и раствора соответственно:

$$N_1(\lambda) = J_0(\lambda) \cdot \epsilon(\lambda) [\sigma_p \cdot l_1 + \Phi(\lambda)] \cdot \exp(-\Sigma_p \cdot l_1) \cdot \Delta\lambda \cdot \Delta\Omega / 1a /$$

$$N_2(\lambda) = J_0(\lambda) \cdot \epsilon(\lambda) [\sigma_p (1-c) l_2 + c \sigma_x(\kappa) l_2 + \Phi(\lambda)] \times \\ \times \exp[-\Sigma_p l_2 (1-c) - c \Sigma_x l_2] \Delta\lambda \cdot \Delta\Omega, \quad /16/$$

где $J_0(\lambda)$ - спектральная плотность в падающем пучке, $\epsilon(\lambda)$ - эффективность детектора, σ_p - сечение некогерентного рассеяния растворителем, отнесенное к единичной толщине растворителя, l_1, l_2 - толщины кювет с растворителем и раствором, $\Phi(\lambda)$ - фон от прямого пучка без образца, Σ_p, Σ_x - линейный коэффициент ослабления пучка растворителем и растворенным веществом, c - объемная концентрация раствора, $\sigma_x(\kappa)$ - искомое дифференциальное сечение малоуглового рассеяния, отнесенное к единичной толщине растворенного вещества. С первого взгляда ясно, что извлечение $\sigma_x(\kappa)$ из 1а и 1б - дело сложное. На самом деле оно возможно, однако ценой довольно громоздкой процедуры измерений и с рядом дополнительных допущений, что в конечном счете приводит к заметной потере точности. Для учета всех факторов требуется выполнить два типа измерений в геометрии рассеяния: $P = N_2 / N_1$, где N_1 и N_2 определены /1а, 1б/;

$$P_0 = \frac{N_{20}}{N_1}, \text{ где } N_{20} - \text{измерение с пустой кюветой, предназна-}$$

наченное для определения фона Φ . Помимо этого, для определения экспоненциальных множителей желательны измерения в геометрии пропускания с детектором в прямом пучке для тех же пар образцов. Соответствующие соотношения

$$П = \exp(-\sum_p(\ell_2 - \ell_1) - c_1 \ell_2 (\sum_x - \sum_p)) \quad /2a/$$

$$П_0 = 1 / \exp(-\sum_p \ell_1) \quad /26/$$

позволяют исключить экспоненциальные множители. Из такого набора измеренных величин можно образовать комбинацию

$$c \cdot \frac{\sigma_x(\lambda)}{\sigma_p} = \left[\left(\frac{P}{\Pi} - \frac{P_0}{\Pi_0} \right) \frac{\ell_1}{\left(1 - \frac{P_0}{\Pi_0}\right) \ell_2} - (1-c) \right], \quad /3/$$

которая дает отношение искомого сечения к сечению некогерентного рассеяния. Последнее с некоторым приближением в исследуемой области переданных импульсов κ можно считать константой.

В опытах с гемоглобином мы придерживались этой процедуры. Зависимость $\sigma_x(\lambda) \cdot \Delta\lambda$ не наглядна, поэтому мы преобразовали ее в зависимость $\sigma_x(\kappa) \cdot \Delta\kappa$, причем

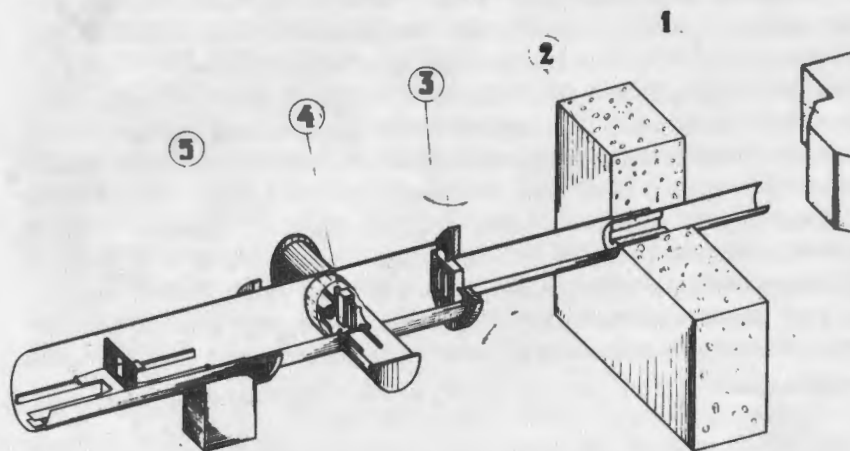


Рис. 1. Основные узлы спектрометра малоуглового рассеяния нейтронов по методу времени пролета. 1 - замедлитель реактора; 2 - коллиматор K1; 3 - юстируемый коллиматор K2; 4 - образец; 5 - детекторы. Истинные размеры и расстояния см. в тексте.

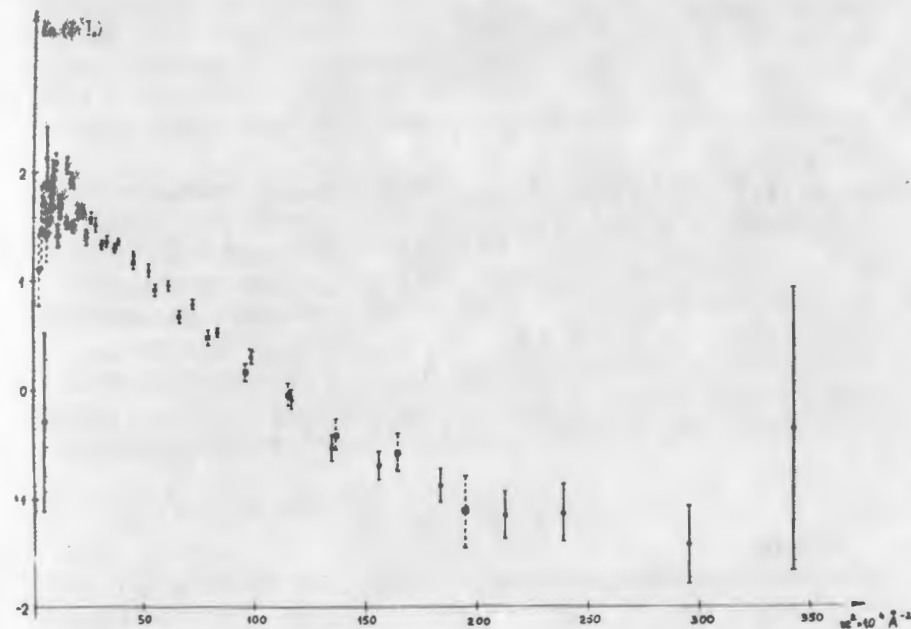


Рис. 2. Сечение малоуглового рассеяния от раствора гемоглобина как функция квадрата переданного импульса. Масштаб вертикальной оси - логарифмический. Кривые получены для раствора метгемоглобина свиньи в H_2O , $c = 93$ мг/мл.

ширина интервала $\Delta\kappa$ выбиралась равной $1/3 \sigma(\kappa)$, где $\sigma(\kappa)$ - дисперсия переданного импульса, обусловленная геометрическими факторами. Окончательный результат приведен на рис. 2, причем изображены данные только с 2 детекторов. Полученная зависимость допускает два типа анализа:

а/ непосредственный анализ измеренной кривой в координатах Гинье с определением радиуса инерции, подверженного искажениям за счет конечного углового разрешения;

б/ анализ свертки теоретического сечения с функцией разрешения методом наименьших квадратов, в результате которого находятся параметры, свободные от влияния разрешающей способности ^{1/2}. Результаты обоих

видов обработки представлены на рис. 3 а, б. Рис. 3а позволяет судить о влиянии разрешающей способности, рис. 3б позволяет заключить, что процедура учета функции разрешения вполне адекватна постановке эксперимента.

Взвешенное среднее для наблюдаемого радиуса инерции гемоглобина $R_g = 19,6 \pm 0,2 \text{ \AA}$ находится в удовлетворительном согласии с результатами работы ^{/3/}. Вместе с тем видно, что точность результата сравнительно невысока, что связано с использованием весьма сложной процедуры измерения и предварительной обработки.

Методика обработки нами была существенно упрощена при исследованиях с растворами рибосом / 50S субчастицы рибосомы E. Coli /. Для фиксированной длины волны

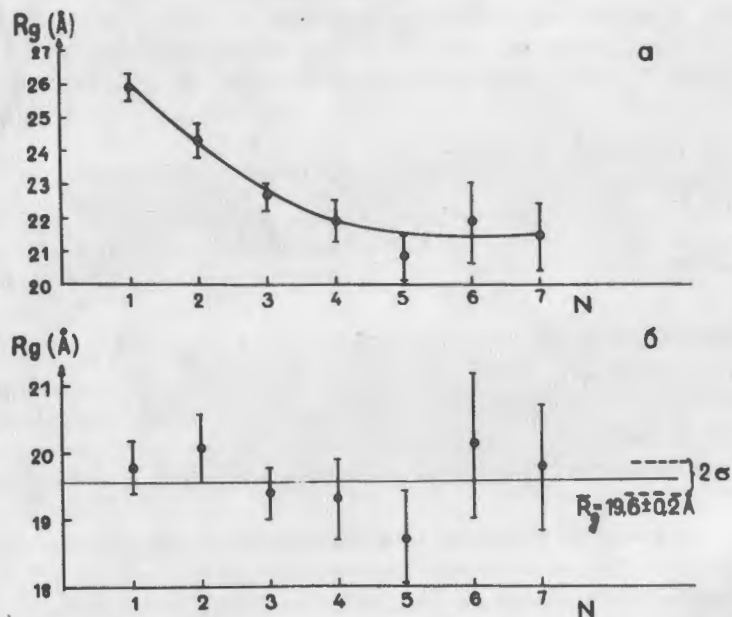


Рис. 3. Наблюдаемый радиус инерции для гемоглобина. N - номер детектора, с ростом N угол рассеяния увеличивается. Кривая а/ - без учета влияния функции разрешения, б/ - после учета влияния функции разрешения.

мы вправе упростить выражения /1а, 1б/, заменяя подавляющее большинство величин константами. Разность $N_2 - N_1$ при этом можно привести к виду:

$$(N_2 - N_1)_{ij} = \epsilon_j (a_i \sigma(\kappa_{ij}) + b_i), \quad /4/$$

где i - номер канала; j - номер детектора, ϵ_j - эффективность j -го детектора. По сути дела, мы возвращаемся к классическому анализу углового распределения рассеянного излучения. При достаточном количестве детекторов этот анализ можно выполнить для любой длины волны /временного канала/. Такой анализ нами был выполнен, причем окончательное выражение для нахождения всех параметров, с учетом углового разрешения, имело вид:

$$F_{ij}(\kappa) = \epsilon_j (a_i \exp(-\kappa_{ij}^2 R_g^2 / 3 (1 + \frac{2}{3} R_g^2 \sigma_\kappa^2))), \quad /5/$$

где σ_κ^2 - дисперсия функции разрешения в гауссовском приближении.

На рис. 4 показаны экспериментальные данные, полученные с раствором 50S субчастицы рибосомы E. Coli с использованием 7 детекторов. На рис. 5 приведены результаты обработки в Гинье-приближении для ~100 каналов временного спектра. Средневзвешенное по найденным значениям R_g дает итоговую цифру эксперимента с весьма высокой точностью. Для более традиционного представления экспериментальных данных мы построили т.н. Гинье-график, т.е. зависимость $\log \frac{(N_2 - N_1)_{ij}}{\epsilon_{j_0} \cdot a_i}$

от $\kappa_{i,j}^2$, /рис. 6/. Последний рисунок показывает, насколько удачным является второй путь обработки,

Полученное нами значение $R_g = 79,75 \pm 0,28 \text{ \AA}$, по видимому, содержит ряд систематических погрешностей, среди которых основную роль играют концентрационные эффекты и точность, с которой известны углы рассеяния. Однако статистическая погрешность $\pm 0,3 \text{ \AA}$ оказывается значительно лучше типичных значений $\pm 1 \text{ \AA}$, встречающихся в аналогичных исследованиях ^{/4/}. Это обстоятельство позволяет уже при достигнутом уровне

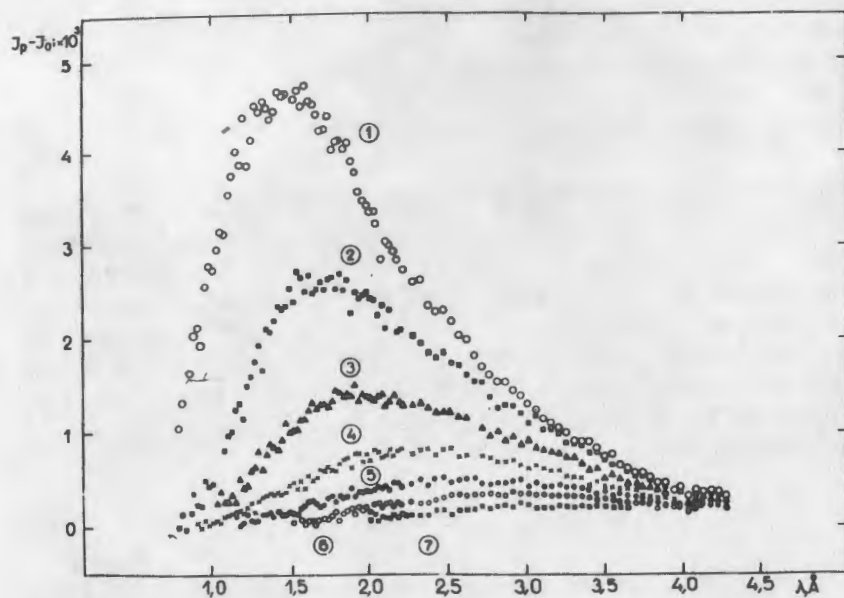


Рис. 4. Экспериментально наблюдаемая зависимость интенсивности малоуглового рассеяния нейтронов от длины волны нейтрона. Разные кривые относятся к различным детекторам. Углы рассеяния: $\theta_i = 5,00; 6,84; 8,68; 10,52; 12,36; 14,2; 16,04 \cdot 10^{-3}$ рад ($1 \leq i \leq 7$). Раствор 50S субчастиц рибосомы *E. Coli* в H_2O / $c = 24,5$ мг/мл/.

развития методики ставить эксперименты, в которых существенны малые изменения R_g .

4. Дифракция на коллагене

Хорошо известно, что малоугловая техника позволяет изучать дифракцию нейтронов в структурах с большим периодом повторения. В щелевой геометрии, реализованной в настоящее время, подходящим объектом исследования являются нитевидные структуры, имеющие одномерную периодичность. Классическим объектом, удовлетворяющим всем перечисленным требованиям, является коллаген.

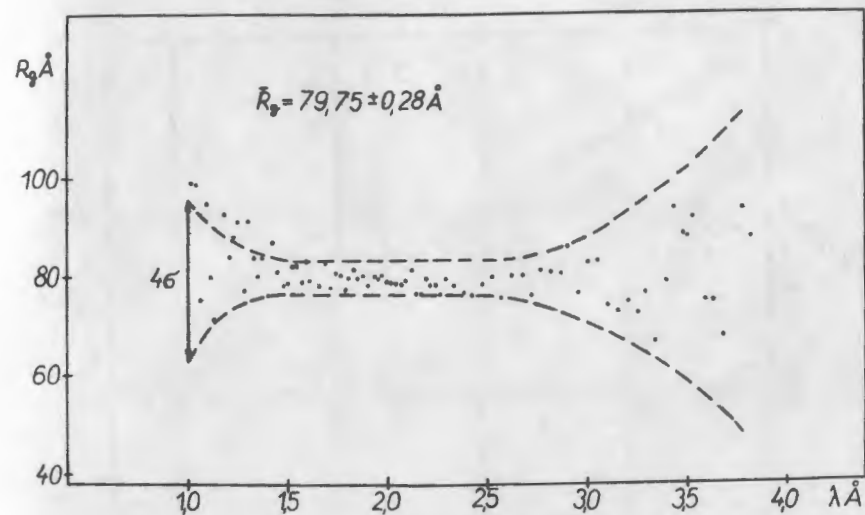


Рис. 5. "Спектр" значений радиусов инерции, полученный при угловом анализе по ф. /5/. Пунктиром отмечен коридор ошибок шириной $\pm 2\sigma$ вокруг среднего значения R_g . σ - стандартное отклонение, полученное в каждой точке при нахождении R_g методом наименьших квадратов.

Образец состоял из 400 нитей $\phi \sim 0,15$ мм, расположенных горизонтально. Приготавливался коллаген из хвостов крыс. Всего было выполнено три опыта: с сухим коллагеном, увлажненным обычной водой и тяжелой водой. В сухом коллагене наблюдались сравнительно слабые дифракционные максимумы, соответствующие первым пяти порядкам брэгговского отражения от структуры с периодом ~ 640 Å. Интенсивности отражений резко менялись при увлажнении образца. При пропитке образца водой резко усиливаются нечетные порядки /рис. 7а/. При пропитке образца тяжелой водой возросла интенсивность отражений /4, 0, 0/ и /6, 0, 0/ /рис. 7б/. Отражение /2, 0, 0/ в увлажненных образцах обнаружить не удалось. Не наблюдались также отражения более высоких порядков, что, возможно, связано с большим возрастом образца /приготовлен, по крайней мере, за 3 года до измерений/. Полученное нами значение $\bar{d} = 654 \pm 6$ Å

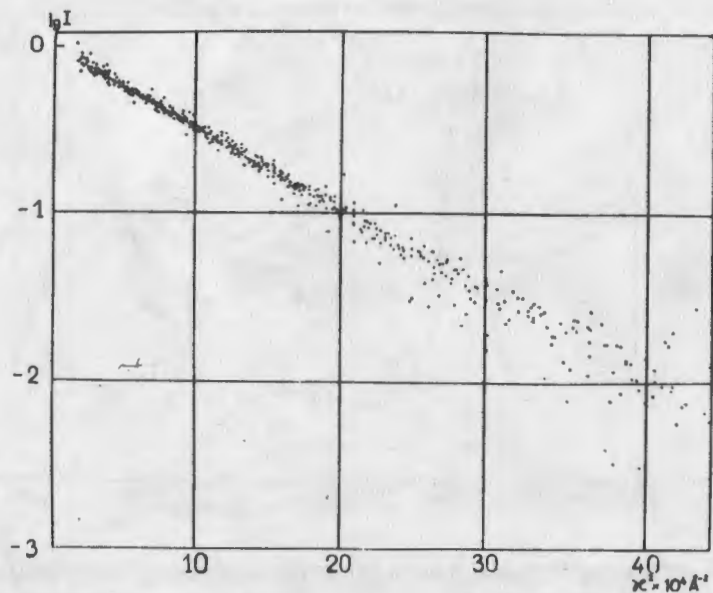


Рис. 6. Гинье-график, построенный при анализе данных, приведенных на рис. 4.

хорошо согласуется со значением $630 \div 670 \text{ \AA}$, приводимым в литературе ^{15/}.

Помимо демонстрации возможностей дифракционных опытов описываемый эксперимент позволяет непосредственно находить аппаратное разрешение спектрометра. Последняя возможность вытекает из того обстоятельства, что в случае малоугловой дифракции в одномерной системе поправки к ширине линий, связанные с разориентацией отдельных нитей, или " мозаичностью " в пределах одной нити, в первом порядке малости отсутствуют. В этом приближении ширина дифракционных пиков Γ должна описываться зависимостью:

$$\Gamma = \frac{c}{n}, \quad /6/$$

где c - константа, вычисляемая из геометрических параметров установки, n - порядок отражения. В обсуждаемом опыте $c_{\text{эксп.}} = 0,65 \pm 0,05 \text{ \AA}$ и находится в удовлетворительном согласии с $c_{\text{расч.}} = 0,70 \text{ \AA}$.

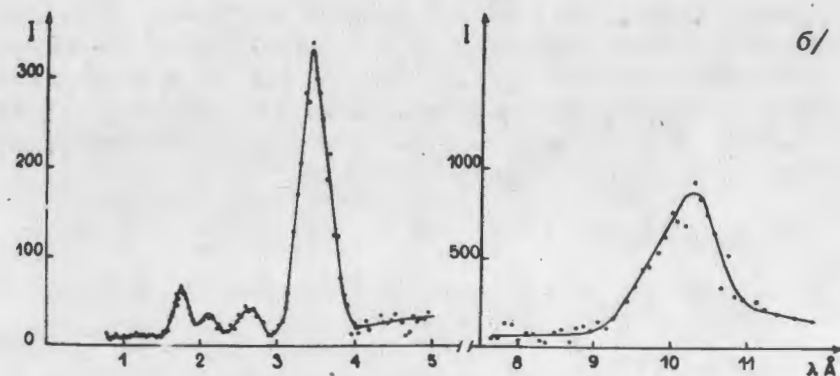
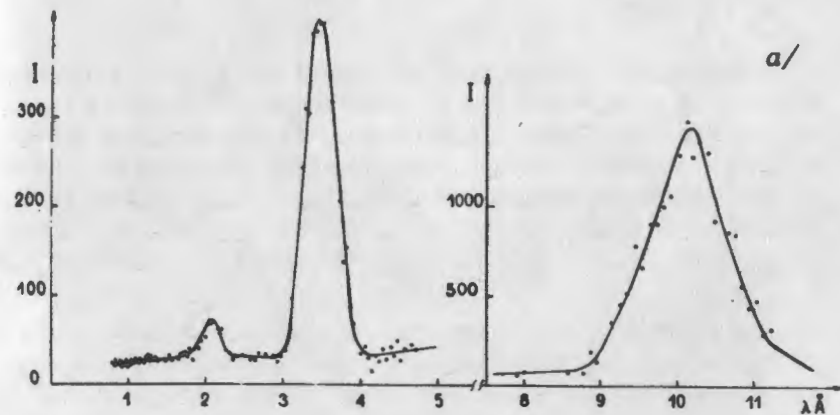


Рис. 7. Малоугловая дифракция на коллагене; а/ образец увлажнен обычной водой; наблюдаемые пики соответствуют отражениям $/1,0,0/$, $/3,0,0/$, $/5,0,0/$ /справа налево/; б/ образец увлажнен D_2O ; дополнительно видны пики $/4,0,0/$ и $/6,0,0/$. Угол рассеяния $16 \cdot 10^{-3}$ рад. Видимые положения пиков несколько смещены от ожидаемых, согласно закону Брэгга, что связано с влиянием конечного углового разрешения.

5. Заключение

Изложенные экспериментальные результаты показывают, что созданный спектрометр малоуглового рассеяния позволяет вести исследования биологических макромолекул в растворах и периодических структур с достаточно высокой точностью. Вместе с тем условия эксперимента пока далеки от оптимальных. Дальнейшее повышение светосилы спектрометра возможно за счет: а/ создания кольцевого детектора и перехода в цилиндрическую /"точечную"/ геометрию, б/ создания охлаждаемого замедлителя нейтронов, в/ создания более мощного импульсного источника нейтронов. Тем не менее, спектрометр позволил подтвердить наши основные выводы о перспективности применения импульсного источника нейтронов и метода времени пролета для исследования малоуглового рассеяния нейтронов.

В заключение авторы выражают благодарность академику И.М.Франку за постоянную поддержку и интерес к работе, И.Н.Сердюку и Б.А.Федорову за предоставление образцов и полезные обсуждения, М.М.Огиевецкой за многочисленные полезные дискуссии, а также К.П.Малышеву, В.И.Лазину, Б.Сили и Ф.Ференци за ценную помощь в процессе создания установки.

Литература

1. И.Гладких, Ж.А.Козлов, Ю.М.Останевич, Л.Чер. ОИЯИ, 3-7655, Дубна, 1974.
2. И.Гладких, Ю.М.Останевич, Л.Чер. ОИЯИ, P3-8589, Дубна, 1975.
3. H. Conrad, A. Mayer, S. Schwaiger and B. Schneider. Hoppe-Seyler's Z. Phys. Biol. Chem., 350, p. E45 (1969). H. Conrad, A. Mayer, H. B. Thomas and H. Vogel. J. Mol. Biol., 41, 225 (1969).
4. P. V. Moore, D. G. Engelman and B. P. Schoenborn. Proc. Nat. Acad. Sci. USA, 71, 172 (1974).
5. Б.К.Вайнштейн. Дифракция рентгеновских лучей на цепных молекулах. Издательство АН СССР, Москва, 1963, стр. 345.

Рукопись поступила в издательский отдел
12 января 1976 года.