

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P13-97-312

А.М.Балагуров, В.П.Глазков*, Д.П.Козленко,
Ю.М.Красников*, И.В.Наумов*, С.Л.Платонов,
А.В.Пухов*, Б.Н.Савенко, В.А.Соменков*, Г.Ф.Сырых*

УСТАНОВКА ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ
НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ
НА МИКРООБРАЗЦАХ

Направлено в журнал «Приборы и техника эксперимента»

*РНЦ «Курчатовский институт», Москва

1997

Установка для исследования неупругого рассеяния нейтронов
на микрообразцах

Дано описание нового нейтронного спектрометра, предназначенного для изучения неупругого рассеяния нейтронов на поликристаллических микрообразцах при высоких давлениях в камерах с алмазными или сапфировыми наковальнями. Спектрометр работает на импульсном реакторе ИБР-2 в ОИЯИ. Приведены параметры, методические особенности установки и примеры экспериментальных исследований.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики им.И.М.Франка ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1997

Перевод авторов

Balagurov A.M. et al.

P13-97-312

Spectrometer for Neutron Inelastic Scattering Investigations
of Microsamples

A new neutron spectrometer for investigation of inelastic neutron scattering on polycrystal microsamples under high pressure in sapphire and diamond anvils cells is described. The spectrometer is operating at the IBR-2 pulsed reactor in JINR. Parameters and methodical peculiarities of the spectrometer and the examples of experimental studies are given.

The investigation has been performed at the Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR.

1. Введение

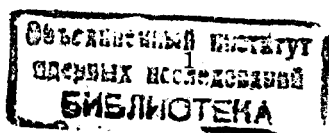
В последние годы в рассеянии нейтронов самостоятельное значение приобретает изучение микроколичеств вещества, открывающее новые возможности в распространении нейтронных методов исследования. Большинство работ в этом направлении выполнено на стационарных реакторах при изучении изменений атомной и магнитной структуры под воздействием высоких давлений с помощью упругого рассеяния (дифракции) нейтронов [1,2]. В последнее время аналогичные исследования проведены на импульсных источниках, постановка экспериментов на которых предоставляет хорошо известные преимущества вследствие фиксированной геометрии рассеяния (см., например, [3]).

Для понимания природы межатомного взаимодействия в конденсированных средах необходимо знать характеристики элементарных возбуждений, которые могут быть получены при изучении неупругого рассеяния нейтронов. Поскольку это рассеяние является гораздо менее вероятным процессом, чем дифракция, то для проведения эксперимента требуется сравнительно большое количество вещества. Тем не менее недавно показано, что техника наковален, позволяющая использовать микроколичества вещества и обеспечивающая более высокий уровень давлений по сравнению с системами типа поршень - цилиндр, может быть успешно применена для исследования фононных возбуждений методом неупругого некогерентного [4] и неупругого когерентного рассеяния нейтронов [5] и может давать новую и существенную информацию относительно межатомных взаимодействий и их изменений при уменьшении объема.

На высокопоточном импульсном источнике ИБР-2 недавно создан новый нейтронный спектрометр ДН-12 [6], предназначенный для изучения упругого и неупругого рассеяния на поликристаллических образцах при высоких давлениях в камерах с сапфировыми или алмазными наковальнями [7]. В настоящей работе дано описание конфигурации данного спектрометра, предназначенной для изучения неупругого рассеяния.

2. Схема и конструкция спектрометра

На рис.1 показана схема спектрометра. Нейтроны, образующиеся в активной зоне реактора (1), термализуются в замедлителе (2) и, пройдя канал в биологической защите (5), попадают на вращающийся прерыватель (4), служащий для устранения фона запаздывающих быстрых нейтронов в промежутке между основным и дополнительными импульсами реактора. Частота вращения прерывателя составляет 25 Гц, размеры окна 160×160 мм². Расстояние от замедлителя до прерывателя составляет 8,8 м. Далее нейтроны проходят вакуумный нейтронный канал (6) с коллиматорами (7), которые ограничивают пучок до размеров 30×30 мм². Материал коллиматоров - борированный полиэтилен и сталь. Держатель образца (13) крепится на корпусе последней секции коллиматора. Положение



образца относительно оси нейтронного пучка контролируется с помощью теодолита ТБ-3.

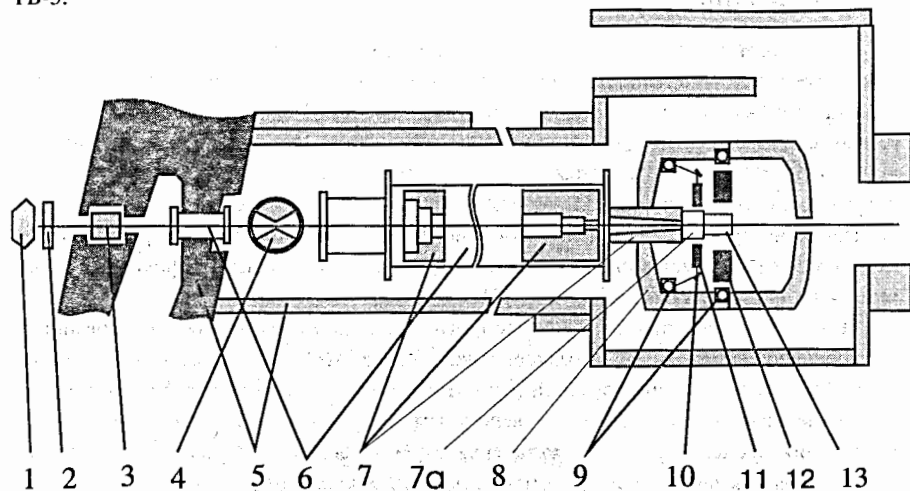


Рис.1. Общий вид спектрометра ДН-12 на реакторе ИБР-2 (вид сверху). 1 - активная зона, 2 - замедлитель нейтронов, 3 - шибберное устройство, 4 - прерыватель пучка, 5 - биологическая защита, 6 - вакуумные нейтронотводы, 7 - коллиматоры пучка, 7а - подвижная часть коллиматора, 8 - защита центральной части спектрометра, 9 - кольцевые детекторы, 10 - анализатор из пиролитического графита, 11 - фильтр из пиролитического графита, 12 - бериллиевый фильтр, 13 - держатель образца

Подвижная часть коллиматора (7а), изготовленная из кадмия, установлена непосредственно перед образцом и является сменной. Диаметр выходного отверстия может быть изменен от 0.5 до 10.0 мм в зависимости от размера образца. С помощью микрометрических винтов подвижная часть коллиматора юстируется относительно образца с точностью 0.1 мм.

Энергетический анализ рассеянных на образце нейтронов осуществляется двумя способами. В первом для фиксации конечной энергии нейтронов используется кольцевой бериллиевый фильтр, охлаждаемый жидким азотом и расположенный между образцом и кольцевым детектором (рис.2). Корпус фильтра (1) имеет форму тороида с прямоугольным сечением. Внешний диаметр составляет 760 мм, внутренний - 200 мм. Внутри корпуса на теплоизолирующих опорах установлен объем (2) для жидкого азота. На его торцевой поверхности радиально расположены 16 Ве-блоков (7) длиной 140 мм. Ве-блоки покрыты кадмием, при этом на торцах блоков оставлены окна для пролета нейтронов от образца (3) до детекторов (4). Внутри корпуса создается вакуум около 10^{-3} мм рт.ст. с помощью форвакуумного насоса. После заливки азота насос отключается и вакуум поддерживается за счет поглотителя (абсорбента из активированного угля) (5). Расход азота составляет

25 литров в сутки. Для выравнивания температуры блоков имеется тепловой экран (6) из полированного Al.

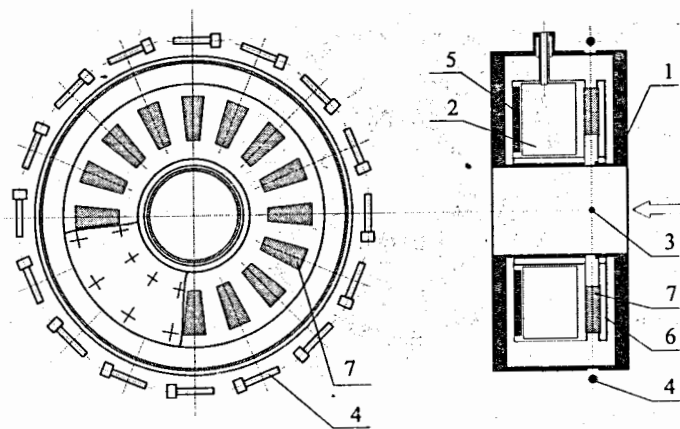


Рис.2. Кольцевой бериллиевый фильтр. 1 - корпус фильтра; 2 - объем для жидкого азота; 3 - образец; 4 - детекторы; 5 - абсорбент из активированного угля; 6 - тепловой экран; 7 - бериллиевые блоки

Во втором варианте для анализа энергии рассеянных нейтронов используется отражение от кристаллов пиролитического графита. Для подавления отражений высших порядков применяется фильтр из того же материала. Корпус анализатора (6) (рис.3) имеет форму тарелки с центральным отверстием диаметром 200 мм для размещения камеры образца. Нейтроны, рассеянные на образце (1), проходят через фильтр (2) толщиной 50 мм, набранный из пластин пиролитического графита. Затем нейтроны падают на анализатор (3) из пиролитического графита размером 50×50 мм² и толщиной 2 мм, который с помощью 4 микрометрических винтов настраивается на отражение нейтронов с энергией 14,2 мэВ. Нейтроны, отраженные анализатором, регистрируются гелиевым счетчиком СНМ-16. Всего имеется 16 фильтров, 16 анализаторов и 16 счетчиков, которые расположены радиально, образуя кольцевую систему. В промежутках между фильтром, анализатором и счетчиком помещаются коллиматоры из кадмия (5). Функция пропускания графитового фильтра показана на рис.4. Пропускание нейтронов с энергией 14.2 мэВ (λ) составляет 80%, в то же время для энергий 56.8 мэВ ($\lambda/2$) и 127.8 мэВ ($\lambda/3$) оно составляет 1%. Однако было установлено, что в некоторых случаях возникает необходимость увеличения толщины графитового фильтра для более полного подавления отражений высших порядков. Сигналы с детекторов поступают на 32-канальный временной анализатор, выполненный в системе КАМАК. Дальнейшая обработка полученных спектров осуществляется на РС-486.

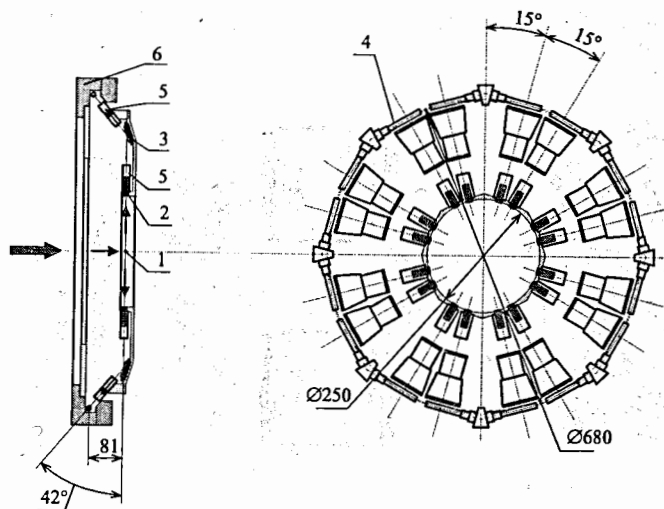


Рис.3. Анализатор из пиролитического графита. 1 - образец; 2 - фильтр из пиролитического графита; 3 - анализатор из пиролитического графита; 4 - детекторы; 5 - кадмиевые коллиматоры; 6 - корпус

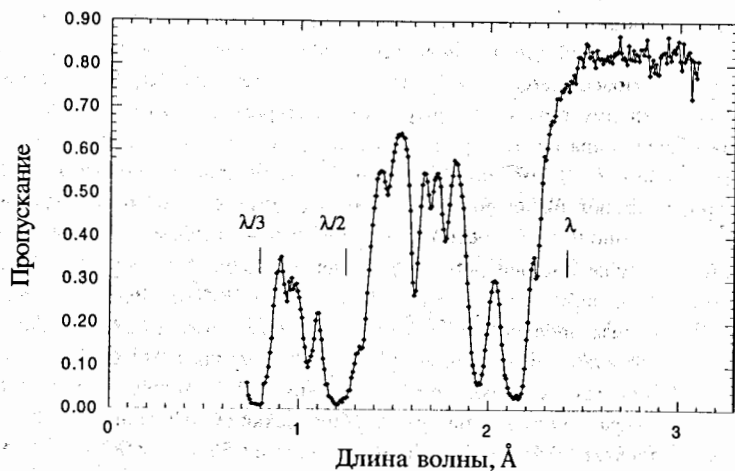


Рис. 4. Функция пропускания графитового фильтра

Кольцевые фильтр, анализатор, коллиматор и детектор закреплены на защите и с помощью микрометрических винтов отъюстированы соосно и перпендикулярно к направлению пучка падающих нейтронов. Спектрометр смонтирован внутри защиты, которая представляет собой замкнутый цилиндрический объем, расположенный соосно с направлением падающих нейтронов. Для изменения

условий эксперимента спектрометр вместе с защитой может перемещаться вдоль пучка.

3. Экспериментальные возможности установки

В табл.1 приведены основные параметры спектрометра. Разрешение спектрометра примерно такое же, как и у других установок для неупругого рассеяния с прямым или обратным бериллиевым фильтром [8,9]. Различия обусловлены только геометрическими факторами (продольными расстояниями и шириной нейтронного импульса). В варианте с использованием пиролитического графита ($E=14.2$ мэВ, $\Delta E/E_0 \sim 13\%$) разрешение в интервале до 50 мэВ примерно в два раза лучше, чем в случае бериллиевого фильтра, где оно по расчетам составляет от 13 до 20% в диапазоне энергий от 3 до 200 мэВ.

Возможности установки применительно к исследованию неупругого некогерентного рассеяния нейтронов на микрообразцах были изучены на образцах различного объема наиболее сильных некогерентных рассеивателей - гидридах циркония $ZrH_{1.93}$ (рис.5) и алюминия AlH_3 (рис.6). Были приняты меры для уменьшения фона (дополнительная коллимация, защита, точная юстировка образца на пучке и т.д.).

Таблица 1. Основные физические параметры спектрометра

Средний поток тепловых нейтронов на образце при мощности реактора 2 МВт	$1 \cdot 10^6$ н/см ² /с
Конечная энергия регистрируемых нейтронов:	
бериллиевый анализатор	4 мэВ
графитовый анализатор	14,2 мэВ
Интервал передач энергии	3 - 200 мэВ
Энергетическое разрешение для передач энергии в интервале 10 - 200 мэВ:	
бериллиевый анализатор	13 - 20%
графитовый анализатор	5 - 12%
Угол рассеяния	90°
Объем образца	2 - 80 мм ³
Диапазон давлений	0-50 кбар
Характерное время измерения спектров при мощности реактора 2 МВт	6 - 48 ч

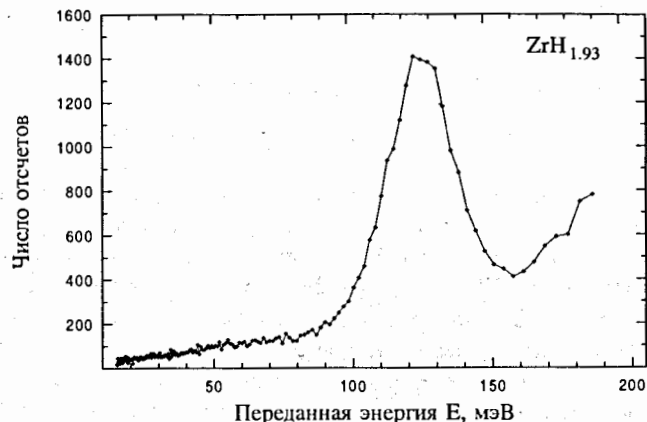


Рис. 5. Спектр неупругого рассеяния на образце $ZrH_{1.93}$

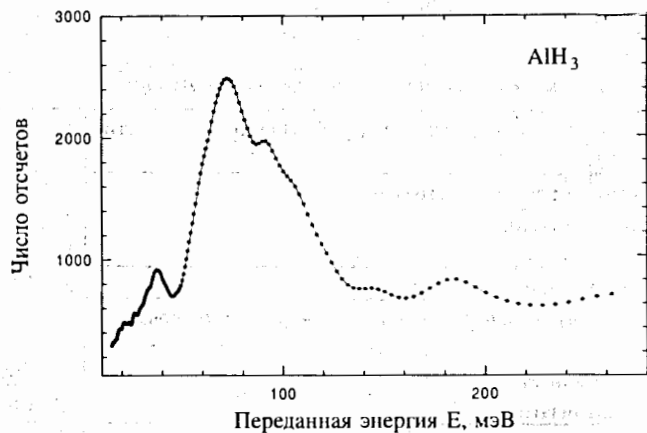


Рис.6 Спектр неупругого рассеяния на образце AlH_3

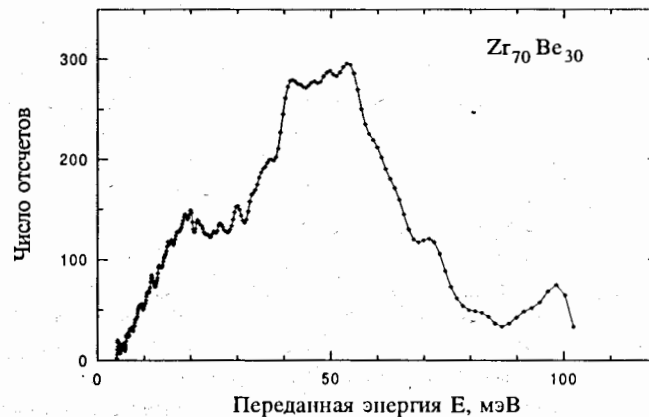


Рис. 7. Спектр неупругого рассеяния на образце металлического стекла $Zr_{70}Be_{30}$

Установлено, что за время от 6 до 20 часов может быть получена вполне приемлемая картина спектров неупругого рассеяния, сравнимая по основным параметрам (разрешение, светосила, соотношение эффект/фон) с аналогичными спектрами, полученными на спектрометрах КДСОГ-М [8] в ЛНФ ОИЯИ и на спектрометре с источником холодных нейтронов [9] в ЛНИТТ РНЦ КИ на образцах существенно большего размера. Сравнение проведено для варианта с бериллиевым фильтром. При сопоставлении результатов следует учитывать, что поток на выходе канала 12 реактора ИБР-2 примерно 3 - 4 раза меньше, чем на других каналах. Поэтому потенциальные преимущества данного спектрометра, связанные с использованием кольцевой системы регистрации, до некоторой степени нивелируются низким нейтронным потоком. Тем не менее полученные результаты доказывают возможность исследования неупругого некогерентного рассеяния на образцах малых размеров (до $2 - 3 \text{ мм}^3$), по крайней мере, для водородосодержащих веществ и других сильных некогерентных рассеивателей и когерентных рассеивателей в некогерентном приближении. Была также оценена возможность работы с образцами со средней рассеивающей способностью. На рис.7 показан спектр неупругорассеянных нейтронов на образце металлического стекла $Zr_{70}Be_{30}$ весом 0.5 грамм. Время измерения составило 4 часа. Полученное число отчетов в первом пике оказалось сравнимым с числом отчетов, полученным на спектрометре с источником холодных нейтронов в ЛНИТТ РНЦ КИ на образце весом 20 грамм.

4. Исследования неупругого рассеяния на микрообразцах

Круг задач, которые могут быть решены при исследовании неупругого некогерентного рассеяния нейтронов на микрообразцах примерно тот же, что и при изучении дифракции нейтронов: это исследования при высоких давлениях в

наковальнях, исследования образцов, полученных при высоких давлениях в микроколичествах, исследования сильно поглощающих, радиоактивных и облученных объектов, изотопических образцов и т.п. В табл.2 приведены данные об исследованиях, проведенных на описываемом спектрометре к настоящему времени.

Таблица 2

вещество	объем образца, мм ³	давление, кбар	диапазон энергий, мэВ	основной результат
NH ₄ Cl	2.5	0 - 40	7 - 60	сдвиги частот, барические зависимости
NH ₄ Br	2	0 - 42	7 - 60	сдвиги частот, изменения при фазовом переходе
C ₆₀	60	0	7 - 200	подтверждение данных об интервале оптических мод
C ₆₀ F ₄₈	70	0	7 - 200	изменения частотного спектра, появление новой моды
AlH ₃	40	0 - 35	20 - 200	сдвиг оптической частоты
ZrH _{1.93}	20	0	20 - 160	подтверждение данных о положении и ширине оптической моды
Zr ₇₀ Be ₃₀	80	0	10 - 100	подтверждение данных о форме колебательного спектра

Соль аммония NH₄Cl была исследована под давлением 0, 10, 16, 27 и 40 кбар при комнатной температуре. Спектры неупругого рассеяния нейтронов измерены с использованием неохлажденного Ве-фильтра. Образец помещался между сапфировыми наковальнями камеры высокого давления [10] (рис.8), специально сконструированной для работы на этом приборе. Объем образца был 2.5 мм³. Диаметр выходного коллиматора составлял 2 мм. Время экспозиции для максимального давления составило 48 ч. Фон измерялся на камере высокого давления без образца. Из спектров неупругого рассеяния нейтронов восстановлены обобщенные плотности колебательных состояний, G(ω) (рис.9). Пик в районе 20 мэВ соответствует решеточным (ТО) колебаниям, а пик в районе 40 мэВ - ротационным колебаниям иона NH₄⁺. Получены барические зависимости положений этих пиков. При 10 кбар (давлении ориентационного упорядочения) наблюдается излом в поведении ротационной моды, неактивной в рамановской спектроскопии.

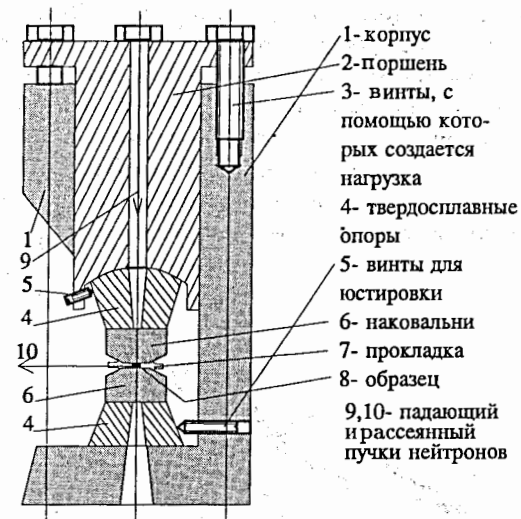


Рис.8. Устройство камеры высокого давления с сапфировыми наковальнями

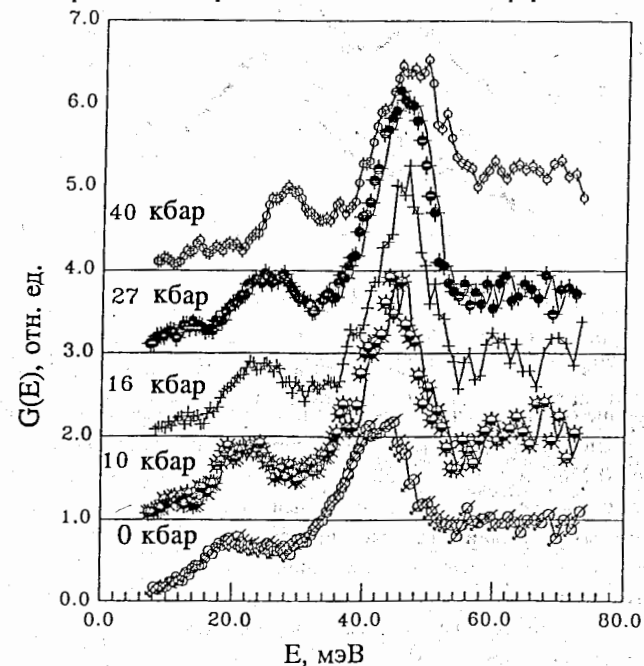


Рис.9. Обобщенная плотность колебательных состояний для образца NH₄Cl

Аналогичные данные были получены и для соли NH_4Br . Измерения были выполнены при охлажденном Ве-фильтре, что позволило сократить время экспозиции примерно в 2 раза. Фазовые переходы в NH_4Br смещены в сторону больших давлений, поэтому исследуемый диапазон давлений был увеличен до 42 кбар, при объеме образца 2 мм^3 . На рис.10 показаны полученные спектры $G(\omega)$. Положение решеточной (ТО) и ротационной моды в зависимости от давления изменяется линейным образом. Однако ширина ротационного пика в районе 25 - 27 кбар (давлении ориентационного упорядочения) уменьшается.

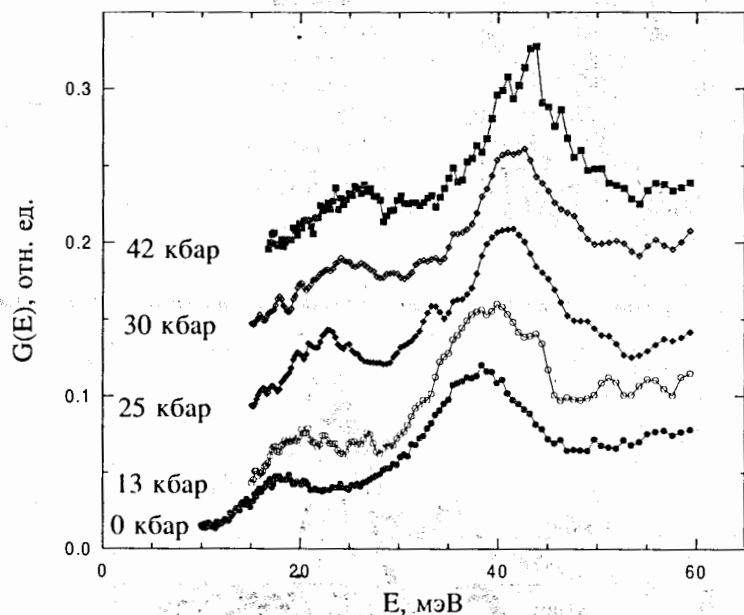


Рис.10 Обобщенная плотность колебательных состояний для образца NH_4Br

Были выполнены измерения спектров неупругого рассеяния нейтронов на фуллерене и фуллериде C_{60} и $\text{C}_{60}\text{F}_{48}$. Вес образцов и время экспозиции были, соответственно, 0.2768 и 0.3533 г, 20 и 15 часов. Измерения проводились при комнатной температуре и нулевом давлении. Показано, что полоса внутримолекулярных колебаний занимает интервал от 50 до 200 мэВ. На рис.11 показаны восстановленные спектры колебаний. Для фуллерена C_{60} полученные данные неплохо совпадают с данными работы [11]. Колебания фторфуллерена $\text{C}_{60}\text{F}_{48}$ имеют примерно тот же интервал энергий, что и у фуллерена C_{60} , но положение пиков уже другое. Идентификация этих мод требует модельных расчетов. Необходимо отметить, что в спектре $\text{C}_{60}\text{F}_{48}$ появился дополнительный

пик при 20 мэВ, который может повлиять на теплоемкость при комнатной температуре.

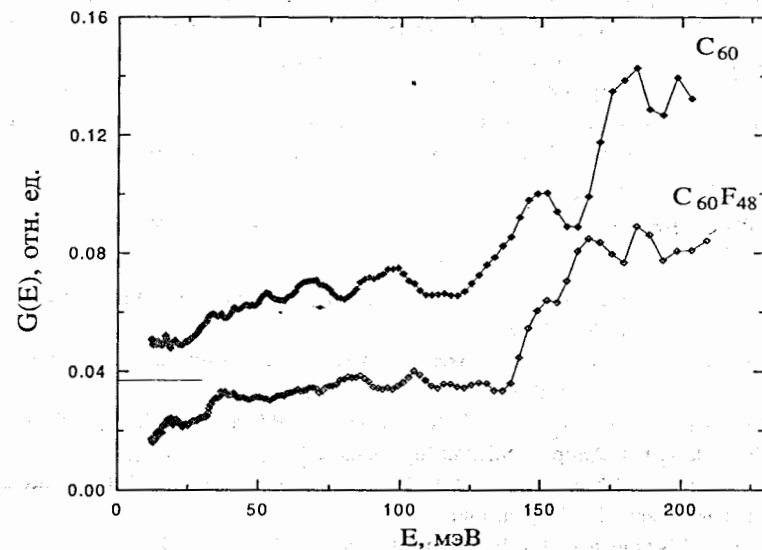


Рис. 11. Обобщенная плотность колебательных состояний для образцов фуллерена C_{60} и фуллерида $\text{C}_{60}\text{F}_{48}$

5. Заключение

Полученные результаты доказывают возможность измерения на данной установке спектров неупругого рассеяния нейтронов на микрообразцах при умеренном разрешении. Это открывает возможности исследования не только кристаллической и магнитной структуры, но и различного типа возбуждений при высоких давлениях, на радиоактивных и облученных образцах, на образцах новых материалов, синтезированных в небольших количествах (в частности, изотопических), то есть в тех случаях, когда количество исследуемого вещества является лимитирующим фактором. Сопоставление данной установки с установками, предназначенными для изучения неупругого некогерентного рассеяния нейтронов, показывает, несмотря на всю условность такого сравнения, обусловленного конкретными экспериментальными факторами, существенные преимущества данной установки в отношении количества вещества, необходимого для исследований, при сравнимом разрешении и светосиле. Возможности дальнейшего совершенствования установки далеко не исчерпаны, прежде всего за счет увеличения апертуры детектора, расположения прерывателя ближе к

источнику нейтронов, использования фильтров более высокого качества и т.д. После реализации этих усовершенствований изучение неупругого рассеяния нейтронов на микрообразцах может стать рутинным методом исследования.

Работа выполнена при поддержке программы РФФИ (проект N 95-02-04690, проект 97-02-17587, проект N 97-02-16622), ГНТП "Актуальные направления в физике конденсированных сред" направление: "Фуллерены и атомные кластеры" (проект N 94032) и программы НИВ.

Авторы благодарны В.Л.Аксенову за поддержку и М.Г.Землянову за полезные обсуждения и признательны И.Ф.Кокину и Н.Н.Паршину за помощь в работе.

Литература

1. V.P.Glazkov, I.V.Naumov, V.A.Somenkov, S.Sh.Shilshtein, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., A264, 367 (1988).
2. I.N.Goncharenko, J.-M.Mignot, G.Andre, O.A.Lavrova, I.Mirebeau, V.A.Somenkov, High Press. Res., 14, 41 (1995).
3. V.L.Aksenov, A.M.Balagurov, B.N.Savenko, V.P.Glazkov, I.N.Goncharenko, V.A.Somenkov, E.V.Antipov, S.N.Putilin, *ibid.*, 127.
4. A.M.Balagurov, B.N.Savenko, A.V.Borman, V.P.Glazkov, I.N.Goncharenko, V.A.Somenkov and G.F.Syrykh, *ibid.*, 55.
5. A.S.Ivanov, I.N.Goncharenko, V.A.Somenkov and M.Braden, *ibid.*, 145.
6. V.L.Aksenov, A.M.Balagurov, S.L.Platonov, B.N.Savenko, V.P.Glazkov, I.V.Naumov, V.A.Somenkov, G.F.Syrykh, *ibid.*, 181.
7. В.П.Глазков, И.В.Наумов, Г.Ф.Сырых "Нейтронный спектрометр" - решение о выдаче патента на изобретение. Заявка N 95117263/25 (030021). Всероссийский научно - исследовательский институт государственной патентной экспертизы. 27 сентября 1996, отдел N 25.
8. Г.Балука, А.В.Белушкин, С.И.Брагин, Т.Залески, М.З.Ишмухаметов, И.Натканец, В.Олеярчик, Я.Павелчик, Сообщение ОИЯИ, P13-84-242 (1984).
9. М.Г.Землянов, А.Е.Головин, С.П.Мионов, Г.Ф.Сырых, Н.А.Черношелеков и Ю.Л.Шитиков, ПТЭ, 5, 34 (1973).
10. В.П.Глазков, И.Н.Гончаренко, Физика и техника высоких давлений, 1, 56 (1991)
11. R.L.Capelletti, G.R.D.Copley, W.A.A.Kamitakahara, Fang Li, G.S.Lannen and D.Ramage, Phys. Rev. Lett., 66, N25, 3261 (1991).

Рукопись поступила в издательский отдел
17 октября 1997 года.