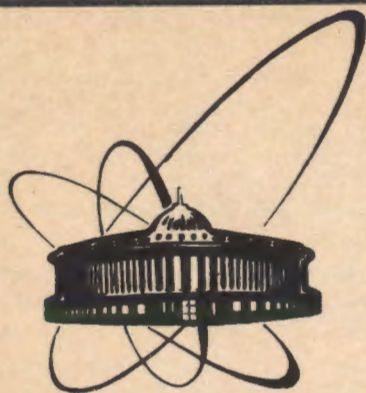


91-529



сообщения
объединенного
института
ядерных
исследований
дубна

P14-91-529

А.М.Балагуров, А.А.Никитин*, В.Е.Новожилов,
А.И.Островной, Б.Н.Савенко, А.П.Сиротин,
Л.С.Смирнов*, Ю.В.Таран

НЕЙТРОННЫЙ ДИФРАКТОМЕТР
ПО ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА
НА ИМПУЛЬСНОМ БУСТЕРЕ ИБР-30

*Институт теоретической и экспериментальной
физики, Москва

1991

Нейтронные дифрактометры по времени пролета на импульсных источниках нейтронов успешно применяются для разнообразных дифракционных экспериментов. Практика показала, что поток нейтронов на образец $\sim 5 \cdot 10^5 \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ и разрешение по $\Delta d/d$ на уровне 0,5% являются достаточными для выполнения структурных исследований на высоком уровне, если дифрактометр оборудован современной детекторной системой и используется достаточно широкий диапазон длин волн для наблюдения дифракции.

Примерами дифрактометров, удовлетворяющих этим требованиям, являются установки на импульсных нейтронных источниках IPNS, США (дифрактометры ^{1/} SEPD и GPPD; их прототип - HRPD^{2/}) и KENS, Япония (дифрактометр HRP^{3/}), введенные в эксплуатацию в последнее время.

В ЛНФ ОИЯИ также имеется импульсный нейтронный источник - быстрый бустер ИБР-30+ЛУЭ-40. На одном из пучков этого бустера установлен нейтронный дифрактометр по времени пролета ДН-3, предназначенный прежде всего для проведения экспериментов в области малых межплоскостных расстояний $d_{hkl} = 0,3 \div 1,5 \text{ \AA}$. В этой области d_{hkl} нейтронные дифрактометры ЛНФ, работающие на импульсном реакторе ИБР-2 (основная базовая установка ЛНФ), не обладают необходимым разрешением из-за большой ширины импульса тепловых нейтронов.

О конструкции и предварительных результатах изучения характеристик дифрактометра ДН-3 на бустере ИБР-30 сообщается в настоящей работе.

ИСТОЧНИК НЕЙТРОНОВ

Быстрый бустер ИБР-30 работает с частотой $\nu = 25 \div 100 \text{ Гц}$ на мощности $W = 2,5 \div 10 \text{ кВт}$. Основной режим отвечает максимальным значениям этих параметров. Длительность импульса быстрых нейтронов при размножении 200 равна 4,5 мкс. Тепловые нейтроны генерируются в П-образном водяном замедлителе толщиной 30 мм, конфигурация и размещение которого относительно активной зоны бустера показаны на рис.1 (позиция 13). По отношению к геометрической оси пучка дифрактометра ДН-3 поверхность замедлителя повернута так, что угол α между осью и перпендикуляром к поверхности составляет 27° . О ширине импульса тепловых нейтронов будет сказано ниже.

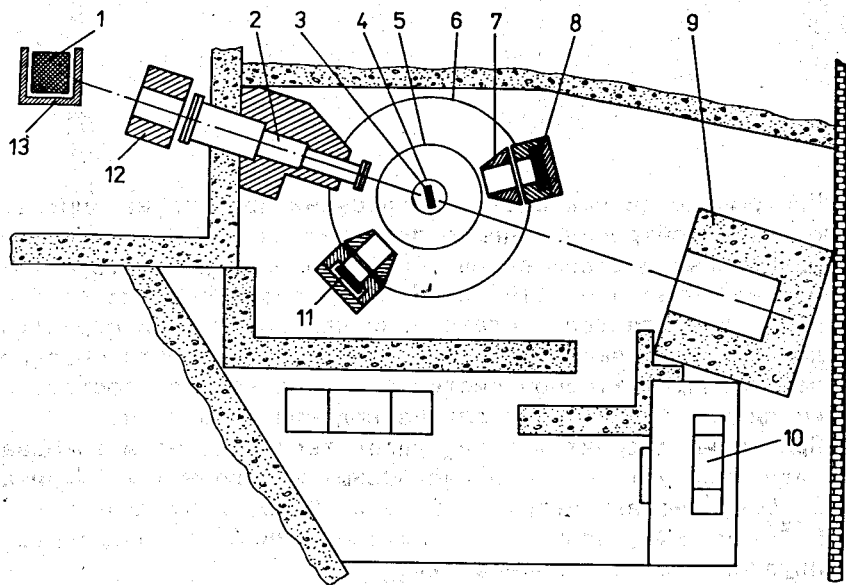


Рис.1. Схема дифрактометра ДН-3 на бустере ИБР-30:
 1 - активная зона, 2 - вакуумная труба, 3 - образец,
 4 - гониометр, 5 - стол, 6 - рельс, 7 - коллиматор,
 8, 11 - детекторы, 9 - ловушка пучка, 10 - измерительный модуль, 12 - сменный коллиматор, 13 - водяной замедлитель.

ФОРМИРОВАНИЕ ПУЧКА НЕЙТРОНОВ

Коллимирующая система ДН-3 состоит из механического сменного коллиматора (позиция 12 на рис.1) и вакуумного нейтронотода (позиция 2). Отверстие в коллиматоре может иметь четыре различных размера, наибольшее из них - диаметром 21 см. Выходное отверстие нейтронотода имеет диаметр 3,6 см. Размеры выходящего пучка тепловых нейтронов могут быть уменьшены до необходимых значений с помощью регулируемой щели.

При диаметре отверстия 21 см в коллиматоре расстояние от замедлителя до образца (позиция 3) равно $L_1 = 11,44$ м. При этом просматривается вся поверхность стороны замедлителя, которая ориентирована на ДН-3 (ее размеры: ширина 268 мм, высота 265 мм), и часть (шириной около 80 мм) перпендикулярной стороны. Пучок такой геометрии имеет на месте расположения образца максимальную плотность потока тепловых нейтронов

$8 \cdot 10^5 \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$, при этом на окружности диаметром 3 см, лежащей в поперечном сечении пучка, поток вдвое меньше.

КОНСТРУКЦИЯ ДИФРАКТОМЕТРА

Принципиальная схема дифрактометра ДН-3 приведена на рис.1. На массивном столе 5 дифрактометра может располагаться различное оборудование: гониометр 4 с образцом 3, пресс для проведения исследований в условиях всестороннего сжатия и т.д. Вокруг стола по круговому рельсу 6 перемещаются две поворотные платформы, на которых установлены на тележках, перемещаемых радиально, коллиматоры 7 и детекторы 8 и 11. Диапазон углов рассеяния 2θ составляет от 0 до 160° слева от пучка нейтронов (если смотреть на замедлитель), и от 0 до 140° справа. Расстояние L_2 от образца до детектора может изменяться в пределах $0,5 \div 1,62$ м.

Прототипом конструкции ДН-3 послужил дифрактометр ДН-2/4/, действующий на реакторе ИБР-2 с 1984 г. Были позаимствованы устройства перемещения и регистрации положения детектора, его защита и т.д. Отличительной особенностью дифрактометра ДН-3

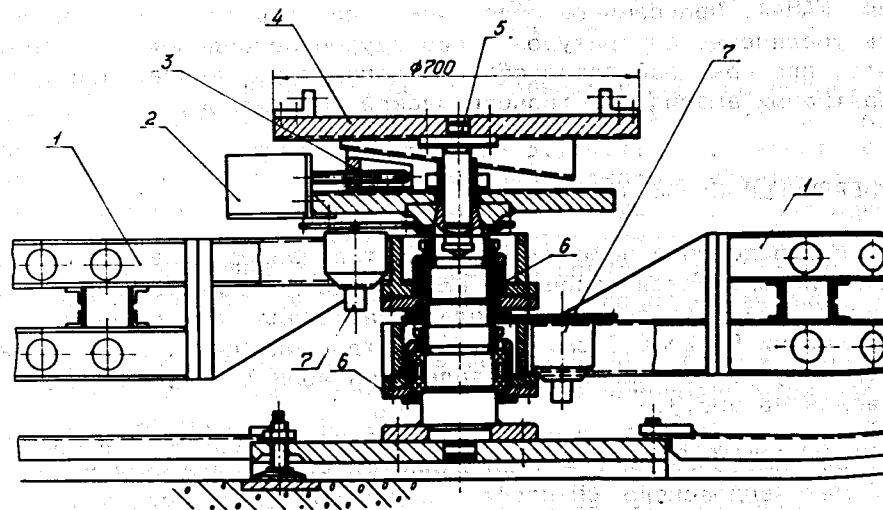


Рис.2. Стол дифрактометра ДН-3: 1 - поворотная платформа, 2 - привод вертикального перемещения, 3 - подвижной клин, 4 - крышка, 5 - вал, 6 - обойма, 7 - датчик углового перемещения.

является его центральная часть, представленная на рис.2. Вокруг вала 5 дифрактометра вращаются две поворотные платформы 1, соединенные с валом посредством обжим 6. Угловые положения поворотных платформ определяются с помощью датчиков 7. Стол дифрактометра, устанавливаемый на валу 5, состоит из верхней и нижней крышек 4 с расположенным между ними подвижным клином 3, с помощью которого и привода 2 верхняя крышка стола может перемещаться в вертикальном направлении. Стол дифрактометра позволяет размещать оборудование массой до 2 т.

ДЕТЕКТОР И ИЗМЕРИТЕЛЬНЫЙ МОДУЛЬ

Для регистрации рассеянного на образце пучка нейтронов на ДН-3 используется однокоординатный позиционно-чувствительный детектор (ПЧД) /4/ с ^3He . При полной длине 40 см счетчика ПЧД (диаметр 4 см) рабочая область выбрана равной $l = 17$ см, при которой разрешающая способность составляет $\Delta l = 0,6$ см по длине нити.

Измерительный модуль практически повторяет модуль ДН-2. Он подробно описан в /5/. Система накопления данных и автоматизации экспериментов на ДН-3 создана на базе ПЭВМ РС/АТ и аппаратуры КАМАК. Программное обеспечение системы позволяет выполнять управление аппаратурой и процедурой проведения эксперимента, проверку работоспособности аппаратуры, визуализацию и оперативный анализ спектрометрической информации.

ПЕРВИЧНЫЙ ПУЧОК НЕЙТРОНОВ

Для определения эффективного спектра падающих нейтронов обычно используется рассеяние на образце поликристаллического ванадия. Нами использовалась пластина металлического ванадия с размерами $5 \times 2 \times 0,5$ см. Экспериментальный спектр рассеянных нейтронов, измеренный в интервале длин волн $\lambda = 0,2 \div 2,5$ Å, приведен на рис.3.

Так как первичный спектр нейтронов из замедлителя быстрого бустера ниже энергии $E = 1$ эВ является сочетанием фермиевского и максвелловского спектров, то для упрощения процедуры определения параметров теплового спектра описание его длинноволновой части (при $\nu = 100$ Гц максимальная длина волны λ , доступная для измерений, равна 3 Å) осуществлялось только с помощью распределения Максвелла $I \sim \lambda^{-a} \exp(-\lambda_m^2/\lambda^2)$, где для равновесного спектра $a = 5$ и $\lambda_m = 1,8$ Å.

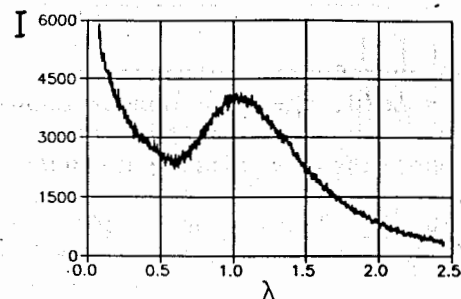


Рис.3. Экспериментальный спектр рассеянных ванадием нейтронов, измеренный на дифрактометре ДН-3. Длительность измерения около 13 часов. Фон (счет детектора без образца) вычтен. По оси абсцисс - длина волны нейтрона λ (Å).

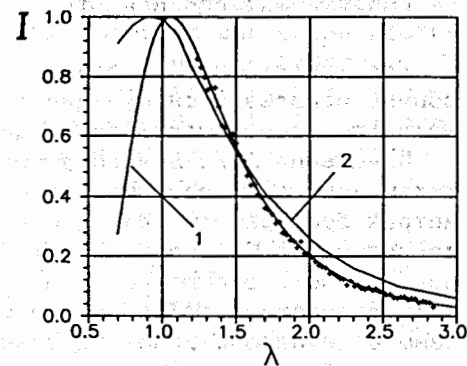


Рис.4. Спектр первичного пучка нейтронов. Точки - часть экспериментального спектра ДН-3; кривые: 1 - фит с помощью максвелловского распределения; 2 - экспериментальный спектр HRPD/2/. По оси абсцисс - длина волны нейтрона λ (Å).

Результат обработки экспериментальных данных по методу наименьших квадратов для интервала длин волн $\lambda = 1,3 \div 2,8$ Å показан на рис.4. Получен параметр $a = 5,7 \pm 0,1$, т.е. "хвост" спадает несколько быстрее, чем для равновесного максвелловского распределения. В значительной мере это обусловлено поглощением в воздухе на четырехметровом участке между замедлителем и вакуумным нейтроноводом. Температура спектра, как следует из полученного параметра $\lambda_m = 1,42 \pm 0,06$ Å, довольно высока: $T = 470$ К.

Для сравнения на рис.4 приведен экспериментальный первичный спектр тепловых нейтронов на HRPD/2/. В длинноволновой части он более мягкий, чем на ДН-3.

Фоновые условия на ДН-3 характеризуются следующей величиной: $0,04 \text{ с}^{-1} \text{ Å}^{-1}$ на ПЧД длиной $l = 17$ см при $\lambda = 2$ Å. Это значение сопоставимо с фоном на ДН-2 для аналогичного ПЧД: $0,05 \text{ с}^{-1} \text{ Å}^{-1}$ при $\lambda = 3$ Å и $l = 40$ см. Однако интенсивность пучка на ДН-3 в 25 раз ниже, чем на ДН-2, поэтому для получения качественных спектров фон на ДН-3 должен быть существенно уменьшен.

РАЗРЕШАЮЩАЯ СПОСОБНОСТЬ

Для характеристики разрешающей способности дифрактометров обычно используется функция $f(d) = \Delta d/d$, где Δd - полная ширина на половине высоты дифракционных пиков от поликристаллов.

Измерения $\Delta d/d$ для ДН-3 были проведены на образце поликристаллического железа диаметром 1,5 см и высотой 4 см при параметрах бустера $\nu = 100$ Гц и $W = 10$ кВт. Расстояние от образца до детектора было равно $L_2 = 1,62$ м. В сменном коллиматоре использовалось отверстие диаметром 21 см, при этом полное пролетное расстояние было равно $L = 13,06$ м. Измерения были сделаны в диапазоне углов рассеяния 2θ от 60° до 160° слева от пучка нейтронов.

На рис. 5 показан один из дифракционных спектров Fe, измеренный при $2\theta = 112,8^\circ$ за 5 часов. Практически все отражения, положения которых на рисунке показаны вертикальными черточками, в диапазоне межплоскостных расстояний $d = 0,27 \div 1,5$ Å разрешены.

Часть полученных результатов по функции разрешения представлена на рис. 6, из которого видно, что $\Delta d/d$ слабо зависит от угла рассеяния при $2\theta > 90^\circ$. Это обусловлено наклоном замедлителя, что согласно [6] приводит к появлению фокусирующих свойств у дифрактометра слева от пучка (для нашей геометрии), и дефокусирующих - справа.

Этот эффект фокусировки более наглядно виден на рис. 7, на котором представлена зависимость относительной временной дисперсии $D = (\Delta d/d)^2$ дифракционного пика (321) железа с $d = 0,767$ Å от $x = \text{ctg}\theta$.

Следуя [6], получим для D следующее выражение с учетом наклона замедлителя, пространственного разрешения Δl ПЧД и поперечного размера образца ΔL :

$$D = A + Bx + Cx^2, \quad (1)$$

где $A = D_t + ((L_1/L)\gamma_1 \text{tg}\alpha)^2$, $B = \mp 2(L_1/L)\gamma_1^2 \text{tg}\alpha$, $C = \gamma_1^2 + \gamma_2^2$, γ_1^2 - дисперсия углов вылета нейтронов из замедлителя, попавших на образец, $\gamma_2^2 = ((\Delta l)^2 + (\Delta L)^2)/L_2^2$, D_t - дисперсия времени вылета нейтронов из замедлителя, выраженная в единицах полного времени пролета, знаки - и + в выражении для коэффициента B относятся к случаям расположения детектора в фокусирующей и дефокусирующей областях соответственно. При $\gamma_2 \ll \gamma_1$ отношение B/C определяется только геометрией дифрактометра и не зависит от коллимации пучка.

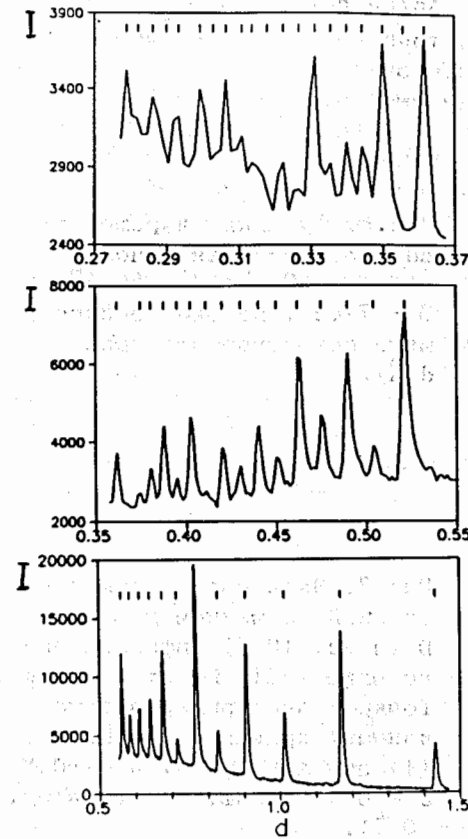


Рис. 5. Дифракционный спектр Fe, измеренный на дифрактометре ДН-3 при $2\theta = 112,8^\circ$. По оси абсцисс - межплоскостное расстояние d (Å).

ного значения $(D_0)^{1/2} = 0,0091$ следует, что ширина импульса тепловых нейтронов $\Delta t_0 < 42$ мкс для длины волны $\lambda_0 = 1,4$ Å.

Аналогичная обработка была сделана для других пиков в дифракционном спектре Fe. Полученные значения D_0 в зависимости от λ_0 представлены на рис. 8. Экспериментальные точки хорошо описываются линейной зависимостью, пользуясь которой, получим при $\lambda = 1,28$ Å ($E = 0,05$ эВ) верхнюю границу ширины импульса тепловых нейтронов бустера $\Delta t_0 < 39$ мкс. Аналогичная величина для HRPD [2] при той же длине волны нейтрона (полиэтиленовый замед-

Для фокусирующей области минимальная дисперсия достигается при угле Брэгга $\theta_0 = \text{arctg}(-B/(2C))$, а ее значение $D_0 = A - B^2/(4C)$ равно относительной дисперсии D_t импульса тепловых нейтронов с длиной волны $\lambda_0 = 2d \cdot \sin\theta_0$. В нашем случае фокусирующая область для основной стороны замедлителя ($\alpha_1 = 27^\circ$) расположена слева от пучка.

Так как при использованном в данной серии измерений отверстии в сменном коллиматоре вклад в пучок дает и часть перпендикулярной стороны замедлителя ($\alpha_2 = 64^\circ$), то слева от пучка появляются дефокусирующие эффекты и коэффициенты A , B и C в ур. (1) приобретают более сложную структуру. Поэтому минимальная дисперсия D_0 может рассматриваться только как верхняя граница величины D_t .

Экспериментальные точки на рис. 7 описывались ур. (1). Получено отношение $B/C = -0,88$, что близко к расчетному (без учета дефокусирующих эффектов) значению $-0,89$. Минимум дисперсии наблюдался при угле Брэгга $\theta_0 = 66,3^\circ$. При этом из экспериментального

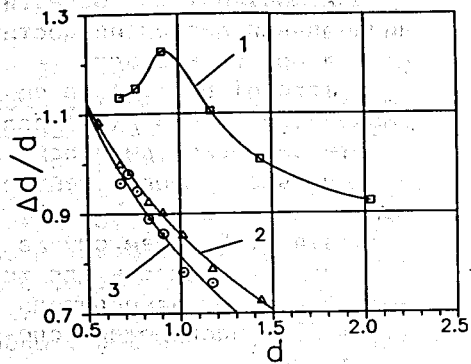


Рис. 6. Функция разрешения $\Delta d/d(\%)$ ДН-3 для углов Брэгга: 1 - $40,5^\circ$; 2 - $56,4^\circ$; 3 - $77,3^\circ$. По оси абсцисс - межплоскостное расстояние $d(\text{Å})$.

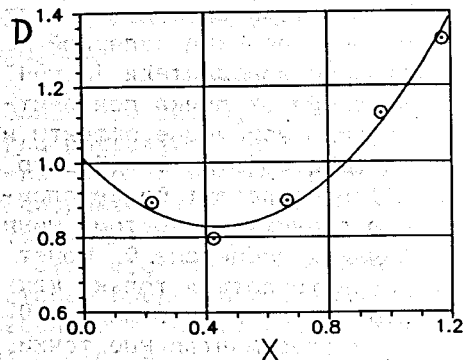


Рис. 7. Зависимость относительной временной дисперсии D (в ед. 10^{-4}) дифракционного пика (321) Fe от $x = \text{ctg}\theta$. Точки - экспериментальные данные; кривая - фит по ур. (1) при $A = 1,014$; $B = -0,85$; $C = 0,97$ (коэффициенты в ед. 10^{-4}).

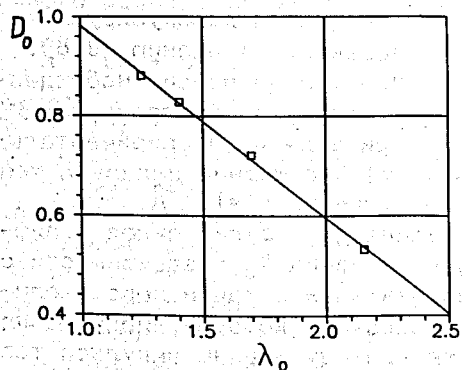


Рис. 8. Зависимость минимальной дисперсии D_0 (в ед. 10^{-4}) от длины волны $\lambda_0(\text{Å})$.

лителю с размерами $100 \times 100 \times 50$ мм, внутри которого на глубине 25 мм был проложен лист Cd толщиной 0,5 мм) равна $\Delta t_0 = 19$ мкс, т.е. существенно меньше, чем для ДН-3.

По крайней мере две причины могут обусловить большое значение величины D_0 . Первая из них связана с толщиной замедлителя. Если учесть его наклон, то для основной части замедлителя получим эффективную толщину 33,7 мм. Пользуясь зависимостью ширины импульса тепловых нейтронов на HRPD^[2] от толщины замедлителя, получим дополнительное уширение теплового импульса на HRPD на 5 мкс при увеличении толщины замедлителя до 33,7 мм, т.е. эффект довольно мал.

Вторая причина связана с другой частью замедлителя. Количество ее вклад оценить затруднительно. Однако качественно ясно, что увеличение минимальной дисперсии D_0 произойдет как за счет дефокусирующих эффектов, так и за счет увеличения эффективной толщины этой части замедлителя. В дальнейшем будут проведены исследования эффектов фокусировки при меньших отворстиях в сменном коллиматоре.

ПРОФИЛЬНЫЙ АНАЛИЗ

Тестовые измерения были проведены с двуокисью циркония ZrO_2 (пространственная группа $P2_1/m$; $z = 1$; параметры решетки: $a = 5,169 \text{ Å}$; $b = 5,233 \text{ Å}$; $c = 5,341 \text{ Å}$; $\alpha = \gamma = 90^\circ$; $\beta = 99,2^\circ$; координаты атомов: Zr - 0,2758; 0,0404; 0,2089; O1 - 0,0690; 0,3420; 0,3450; O2 - 0,4510; 0,7580; 0,4790), которая используется в качестве стандарта наряду с Al_2O_3 .

Порошок ZrO_2 помещался в тонкостенную ампулу из металлического ванадия диаметром 1,5 см и высотой 5 см. Угол рассеяния был равен $2\theta = 110^\circ$. Бустер имел мощность $W = 2,5$ кВт и частоту $\nu = 25$ Гц. Длительность измерения одного спектра около 30 часов. Нормировка спектров осуществлялась с помощью параметрической функции, описывающей ванадиевый спектр рассеяния (рис. 4).

Профильный анализ дифракционного спектра по методу Ритвельда был выполнен с использованием программы MR1A^[7] при фиксированных структурных параметрах ZrO_2 . Экспериментальный спектр ZrO_2 , расчетная и разностная кривые приведены на рис. 9. Качество фита характеризуется статистическим и профильным R-факторами, равными 4,8 и 9,8% соответственно.

Основные параметры дифрактометра ДН-3

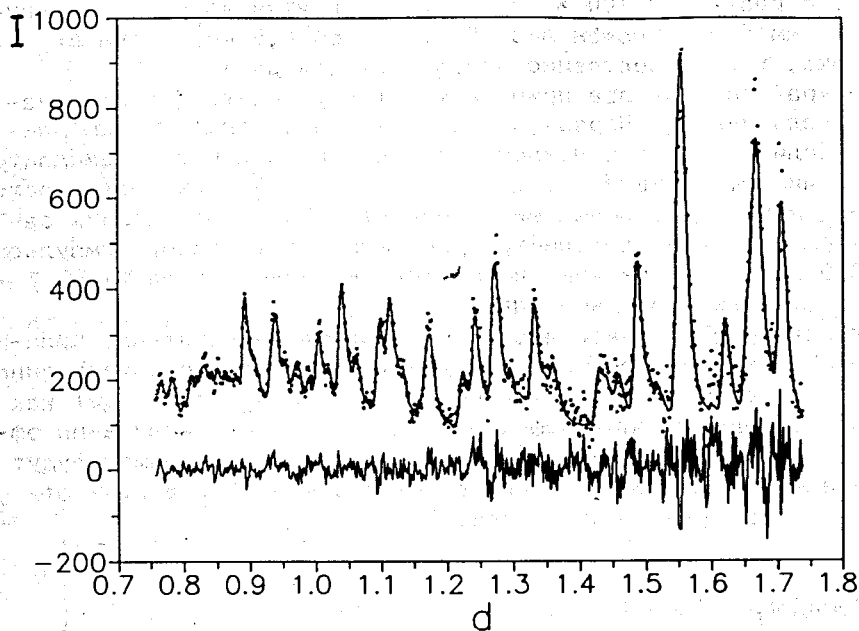


Рис.9. Дифракционный спектр ZrO_2 , измеренный на ДН-3 при $2\theta = 110^\circ$. Показаны экспериментальные точки, расчетный профиль и разностная кривая. По оси абсцисс - межплоскостное расстояние d (Å).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Параметры дифрактометра ДН-3 приведены в таблице.

Дальнейшие меры по его усовершенствованию могут включать следующее:

1) установку на основной водяной замедлитель бустера дополнительного съемного замедлителя из органического стекла с размерами $280 \times 264 \times 18$ мм с листом Cd толщиной 0,5 мм между ними;

2) создание более эффективной защиты дифрактометра для существенного понижения фона;

3) исследование фокусирующих свойств ДН-3 в зависимости от угловой расходимости первичного пучка нейтронов;

4) изготовление детекторной системы с использованием "точечных" счетчиков с существенно большим телесным углом^{5/};

5) изготовление двухкоординатной позиционно-чувствительной камеры на He.

Нейтронный источник	импульсный бустер ИБР-30+ЛУЭ-40
Замедлитель, 3 см	вода
Частота ν импульсов бустера, Гц	$25 \div 100$
Мощность W бустера, кВт	$2,5 \div 10$
Нейтроновод	вакуумная труба
Входная и выходная апертуры трубы, см	диаметр 21 и 3,6
Коллимация:	
а) перед трубой, см	переменная, максим. диаметр 21
б) после трубы, см	переменная, максим. диаметр 3,6
Расстояние L_1 замедлитель-образец, м	11,44
Расстояние L_2 образец-детектор, м	$0,5 \div 1,62$
Поток тепловых нейтронов на образец, $см^{-2} с^{-1}$	$8 \cdot 10^5$
Диапазон длин волн λ :	
а) $\nu = 100$ Гц, Å	$0,1 \div 3$
б) $\nu = 50$ Гц, Å	$0,1 \div 6$
Диапазон углов рассеяния 2θ в фокусирующем режиме	$0 \div 160^\circ$
Диапазон межплоскостных расстояний d_{hkl} :	
а) $\nu = 100$ Гц, Å	$10,3 \div 2,5$
б) $\nu = 50$ Гц, Å	$10,3 \div 5$
Ширина импульса быстрых нейтронов бустера, мкс	4,5-
Ширина импульса тепловых нейтронов при $\lambda = 1,28$ Å, мкс	≤ 39
Разрешающая способность $\Delta d/d$:	
а) $d = 1$ Å, $\theta = 70^\circ$, %	0,8
б) $d = 2$ Å, $\theta = 40^\circ$, %	0,9
Детектор	³ He ПЧД, $l = 40$ см, $\phi 4$ см, разрешение - 0,6 см
Фон на ПЧД с $l = 17$ см при $\lambda = 2$ Å, $с^{-1} Å^{-1}$	0,04
Оборудование для образца	трехосный гониометр, криостат $4,2 \div 300$ К, камера высокого давления до 10 кбар
Система контроля и накопления данных	РС/АТ-286

Выполнение этих мероприятий позволит увеличить светосилу и улучшить разрешающую способность ДН-3 и поставит его в ряд дифрактометров, действующих на нейтронных источниках с использованием ускорителей заряженных частиц (spallation sources^{1,3/}). Важным обстоятельством является дополненность характеристик дифрактометров ДН-2 и ДН-3 и их функционирование в рамках одной лаборатории, в частности, возможность измерения нейтронограмм в уникально широком диапазоне длин волн от 0,2 (ДН-3) до 20 Å (ДН-2). Самостоятельный интерес ДН-3 представляет прежде всего для дифракционных исследований монокристаллов в условиях всестороннего сжатия. Сочетание времени пролета и линейного ПЧД дает возможность эффективно регистрировать данные в большом объеме обратного пространства кристалла, а работа на малых длинах волн позволяет резко улучшить условия работы с камерами высокого давления.

Авторы выражают благодарность члену-корр. АН СССР Ю.Г. Абову и доктору физико-математических наук В.И. Луцикову за интерес к проведенной работе и поддержку.

Работа выполнена при финансовой поддержке Государственной программы по ВТСП в соответствии с проектами N°769 и N°90287 ГКНТ СССР.

ЛИТЕРАТУРА

1. Jorgensen J.D. et al. - J.Appl.Cryst., 1989, 22, p.321.
2. Jorgensen J.D., Rotella F.J. - J.Appl.Cryst., 1982, 15, p.27.
3. Watanabe N. et al. - Jpn.J.Appl.Phys., 1987, 26, p.1164.
4. Балагуров А.М. и др. - ОИЯИ, 3-84-291, Дубна, 1984.
5. Балагуров А.М. и др. - ОИЯИ, P10-91-155, Дубна, 1991.
6. Балагуров А.М. - ОИЯИ, 3-7526, Дубна, 1973.
7. Злоказов В.Б., Чернышев В.В. - ОИЯИ, P10-90-315, Дубна, 1990.

Рукопись поступила в издательский отдел
2 декабря 1991 года.