

**ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА**

X 123

P3-88-315

**С.Хабрыло, С.И.Брагин, Е.Браньковски,
К.Завальски, В.Иваньски, Я.Майер,
В.Навроцик, И.Натканец**

**УСТАНОВКА ДЛЯ НЕЙТРОННЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД
ПОД ВЫСОКИМ ДАВЛЕНИЕМ
НА СПЕКТРОМЕТРЕ ОБРАТНОЙ ГЕОМЕТРИИ**

Направлено в журнал "Приборы и техника
эксперимента"

*Институт физики Университета им. А.Мицке-
вича, Познань

1988

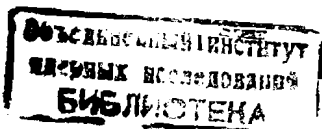
1. Введение

Исследования конденсированных сред при высоких давлениях вызывает возрастающий научный и технический интерес. Нейтронные исследования при высоких давлениях были начаты в середине 60-х годов и к настоящему времени накоплен богатый материал как по экспериментальной технике, так и по тематике этих исследований /1,2/. Преимуществом теплых нейтронов является их хорошая проникающая способность для ряда конструкционных материалов камер высокого давления (ВД). С другой стороны, небольшие плотности нейтронного потока требуют сравнительно большого объема исследуемого образца, что существенно ограничивает предел максимальных давлений. Эксперименты по рассеянию нейтронов позволяют получать информацию об изменении структуры и динамики исследуемого образца в зависимости от давления. Получение такой информации другими методами затруднительно или в принципе невозможно.

Исходя из экспериментальных возможностей импульсного реактора ИБР-2 /3/ была создана установка для высоких давлений на спектрометре КДСОГ-М /4/, который позволяет одновременно измерять спектры ДН и ННРН. При создании установки была выбрана газовая система, так как она дает возможность получения однородного гидростатического давления в камере образца. Применение газообразного гелия в качестве среды, передающей давление, позволяет проводить исследования в широком диапазоне давлений и температур при незначительном искажении фонового спектра рассеянных нейтронов. Однако применение газа вызывает проблемы с уплотнением и, следовательно, трудности в конструировании, технологии и в подборе материалов.

2. ОПИСАНИЕ УСТАНОВКИ

Схема установки высокого давления показана на рис.1. В качестве источника давления использован газовый компрессор GCA -10A (2) производства фирмы "Unipress", Польша, позволяющий получать давление в диапазоне от 0 до 1500 МПа. Средой, передающей давление, является газообразный гелий, который подается



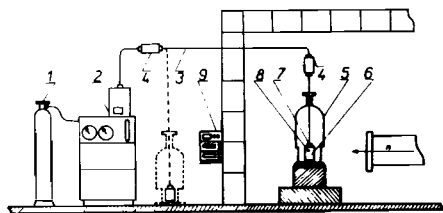


Рис.1. Схема установки высокого давления: 1 - баллон с газообразным гелием, 2 - компрессор GCA-10A, 3 - бериллиево-бронзовый капилляр, 4 - микрокамера, 5 - гелиевый криостат, 6 - камера высокого давления, 7 - марганцевый датчик, 8 - платиновый термометр, 9 - блоки контроля эксперимента.

в установку из баллона (1) под давлением 8-15 МПа. Основными узлами компрессора являются: три ступени сжатия, масляный насос, управляющие вентили, а также манометры контроля. Газ сжимается поочередно: в первой ступени от начального давления (давления в баллоне) до 75 МПа, во второй ступени от 75 МПа до 400 МПа и в третьей ступени до 1500 МПа. Сжатие газа производится с помощью масла, нагнетаемого в цилиндры отдельных ступеней масляным насосом высокого давления. Насос соединяется с соответствующей ступенью сжатия путем ручного закрывания и открывания

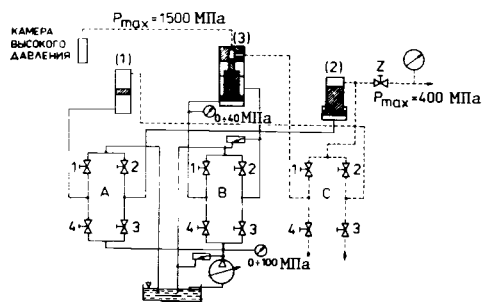


Рис.2. Схема гидравлической части установки высокого давления: — масляная система, - - - - газовая система, А, В, С - блоки управляющих вентилях, (1), (2), (3) - три газовые ступени сжатия.

вентилей управления. Специальный запорный вентиль позволяет работать непосредственно со второй ступенью сжатия. Схема гидравлической части установки ВД представлена на рис.2.

Рабочая камера ВД, в которой находится исследуемый образец, соединяется с выходом компрессора с помощью капилляра из бериллиево-бронзы (3), допустимое рабочее давление которого составляет 1700 МПа, что выше максимального рабочего давления компрессора. В системе передачи давления смонтированы две микрокамеры (4) (рис.1), позволяющие подключать рабочую камеру ВД как вне спектрометра (на время подготовки эксперимента), так и в нейтронный пучок на спектрометре. Измерение давления производится с помощью марганцевого датчика (7), включенного по мостовой схеме. Сигнал от нее подается в систему контроля и управления условиями эксперимента спектрометра КДСОГ-М^{/5/}. Значение контролируемого таким образом давления опрашивается периодически и сравнивается с заданным. Отклонение от заданного значения за установленные пределы вызывает программное прерывание измерений, а возврат в пределы автоматически запускает измерения. Оборудование установки ВД позволяет проводить нейтронные исследования под высоким давлением при различных температурах в диапазоне от 10 К до 300 К. Для этих целей служит гелиевый криостат шахтного типа (5) с продувкой холодного гелия. Выбор и регулировка желаемой температуры осуществляется с помощью электронного блока регулировки температуры (9). Планируется соединить его с электронным модулем спектрометра, что позволит управлять им программным путем с помощью системы контроля и управления условиями эксперимента спектрометра КДСОГ-М.

Необходимо обратить внимание на то, что конструкция камер ВД, а также применение соответствующего материала для ее изготовления должны быть всегда связаны с задачей эксперимента: тип образца и необходимый его объем, диапазон давлений, диапазон температур и т.д. Объединение методики высокого давления и рассеяния нейтронов от образца при различных температурах требуют специальных свойств материала и конструкции камеры ВД. Материал рабочей камеры должен обладать высокопрочными свойствами, но, в то же время, достаточной прозрачностью для нейтронов и вносить минимальный вклад в измеряемые спектры нейтронов^{/6/}. Камеры из бериллиевой бронзы, которые применяются в других физических исследованиях под высоким давлением (рентген, ЯМР и т.д.), не могут быть использованы в нейтронных экспериментах из-за большого сечения поглощения меди.

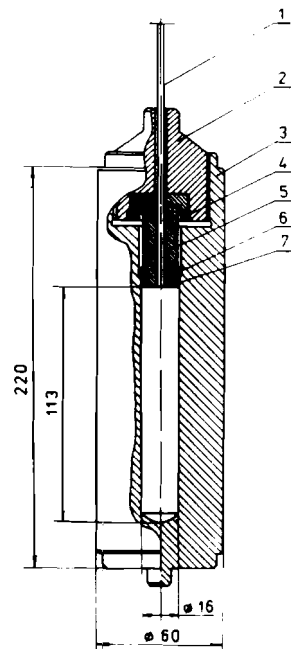


Рис.3. Нейтронная камера высокого давления: 1 - капилляр, 2 - зажимной болт, 3 - корпус, 4 - гайка, 5 - пробка, 6 - прокладка, 7 - гайка.

На рис.3 представлена камера ВД для нейтронных исследований пластических и жидких кристаллов на установке КДСОГ-М. При конструировании камеры ВД были использованы разработки, приведенные в литературе ^{7/}. Камера изготовлена из высокопрочного алюминиевого сплава В95 (Al-Zn-Mg-Cu) и предназначена для исследований упругого и неупругого рассеяния нейтронов при максимальном давлении $P = 400$ МПа и рабочем объеме до $V = 22,7$ см³.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Первые нейтронные измерения под высоким давлением на спектрометре КДСОГ-М были проведены на образце четыреххлористого углерода CCl_4 . Это вещество переходит в твердое состояние при комнатной температуре и давлении 1,3 МПа. Оно имеет несколько структурных фазовых переходов ^{7/8/} в сравнительно небольшом диапазоне давлений и хорошо подходит для тестовых измерений.

На рис.4 представлены спектры дифракции нейтронов (ДН) на образце CCl_4 , полученные при комнатной температуре и давлениях, соответствующих жидкой и двум твердым фазам (указаны римскими цифрами), а также спектр ДН от пустой камеры ВД. Масса образца, заполняющего рабочий объем камеры ВД ($\Phi = 16$ мм, $h = 100$ мм), составляла 32 грамма, угол рассеяния $2\Theta = 28^\circ$, а время измерения каждого спектра равнялось одному часу. В диапазоне межплоскостных расстояний от 2,5 до 5,5 Å имеются хорошие условия для наблюдения дифракции нейтронов от исследуемого образца, так как в этой области отсутствует дифракция от материала камеры.

Эти измерения показали, что структурный фазовый переход в когерентно рассеивающем образце можно наблюдать за время в несколько минут.

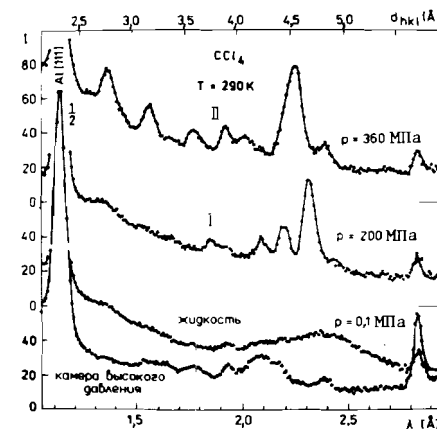


Рис.4. Спектры ДН от камеры ВД с образцом CCl_4 (-o-), спектры ДН от пустой камеры ВД (-o-). I - интенсивность рассеянных нейтронов, нормированная на спектр нейтронов, падающих на образец.

Тестовые измерения рассеяния нейтронов на водородсодержащих образцах под высоким давлением были проведены на циклогексаноле ($C_6H_{11}OH$) и d-камфоре ($d-C_{10}H_{16}O$).

На рис.5б, в представлены спектры ДН для плоского образца $C_6H_{11}OH$ с массой около 2 г и размером 1,5 мм x 15 мм x 100 мм, а также спектр ДН для пустой камеры ВД с соответствующим держателем образца - рис.5а. Время измерения составляло примерно 3 часа.

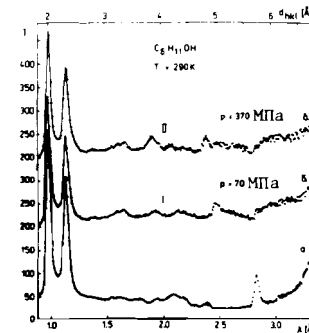


Рис.5. Спектры ДН от пустой камеры ВД (а), спектры ДН от камеры ВД с образцом $C_6H_{11}OH$ (б, в).

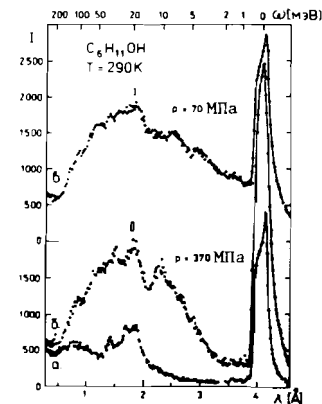


Рис.6. Спектры НРН от пустой камеры ВД (а), спектры НРН от камеры ВД с образцом $C_6H_{11}OH$ (б, в).

Спектры нормированы к одинаковому числу отсчетов монитора и на спектр падающих нейтронов. Несмотря на большой фон некогерентно рассеянных нейтронов от водорода, дифракционные пики от исследуемого вещества выделяются на нем довольно хорошо. На рис.6б, в показаны спектры ННРН для камеры ВД с образцом $C_6H_{11}OH$, а на рис.6а показан вклад от пустой камеры ВД. Эти спектры получены одновременно с измерением ДН, просуммированы по четырем углам рассеяния ($80^\circ, 100^\circ, 120^\circ, 140^\circ$) и нормированы по счёту монитора на один час измерений. Как видно, ННРН от водородсодержащего образца массой около 2 г в среднем в 3 раза больше фона от пустой камеры ВД.

Для определения оптимальной геометрии образца измерены спектры ДН и ННРН d -камфоры в форме цилиндра диаметром 15 мм,

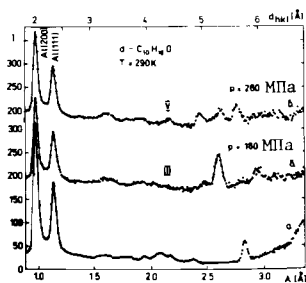


Рис.7. Спектры ДН от пустой камеры ВД (а), спектры ДН от камеры ВД с образцом $d-C_{10}H_{16}O$ (б, в).

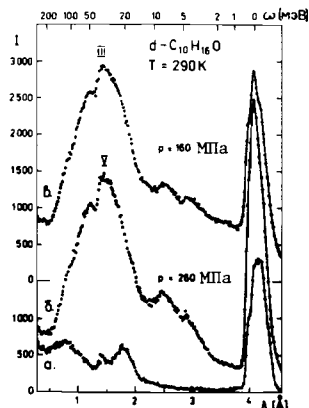


Рис.8. Спектры ННРН от пустой камеры ВД (а), спектры ННРН от камеры ВД с образцом $d-C_{10}H_{16}O$ (б, в).

при толщине 1,5 мм и высоте 90 мм. Масса образца составляла 6,5 граммов. Эти спектры были получены в течение одного часа. Спектр ДН от камеры ВД с соответствующим держателем образца приведен на рис.7а, а спектры ДН от камеры с образцом на рис.7б, в. И в этом случае в спектрах ДН наблюдается довольно хорошо индуцированный давлением фазовый переход. Спектры ННРН для камеры ВД с образцом $d-C_{10}H_{16}O$ и спектр от камеры приведены соответственно на рис.8б, в и 8а. Все они были получены также в течение одного часа и просуммированы по четырем углам рассеяния ($30^\circ, 50^\circ, 70^\circ, 90^\circ$). Увеличение массы образца за счет его цилиндрической формы

приводит к пропорциональному увеличению отношения эффекта к фону. Это позволяет лучше следить за изменением фоновых спектров и квазиупругого рассеяния нейтронов в зависимости от давления.

4. ВЫВОДЫ

Созданная на спектрометре КДСОГ-М установка высокого давления значительно расширяет круг физических задач, решаемых с ее помощью. В настоящее время предельное допустимое давление для имеющихся камер ВД составляет 400 МПа. Это позволяет проводить исследования в основном молекулярных кристаллов, где, как известно, относительно умеренные давления вызывают довольно сильные изменения как в динамике, так и в структуре веществ. Тестовые измерения алюминиевой камеры ВД показали, что она имеет небольшой фон некогерентного рассеяния нейтронов и позволяет хорошо измерять дифракцию нейтронов с межплоскостным расстоянием от 2,5 до 5,5 Å как на когерентно рассеивающих образцах, так и на водородсодержащих образцах. Масса образцов может составлять от 2 до 32 г, а время экспозиции – от нескольких минут до нескольких часов, в зависимости от вида эксперимента и формы образца. В случае ННРН получено хорошее отношение эффекта к фону. Эти результаты показывают целесообразность разработки камер ВД на более высокие давления, вплоть до 1500 МПа (предельное давление, создаваемое компрессором), что требует значительного уменьшения объема образца. Это ухудшит отношение эффект-фон, однако, как показывают полученные результаты, увеличение времени измерений позволит получать надежные данные как по ДН, так и по ННРН. В области малых передач энергии, т.е. вблизи упругой линии, хорошие условия для наблюдения квазиупругого рассеяния нейтронов должны полностью сохраниться.

Аналогичные газовые установки высокого давления, которые используются в нейтронных экспериментах, работают в нескольких научных центрах мира ^{9,10}. Дополнение спектрометра КДСОГ-М установкой ВД дает уникальную возможность одновременного наблюдения изменений как в структуре, так и в динамике веществ при фазовых переходах, индуцированных давлением.

В заключение авторы выражают благодарность Р.Вишневскому и Ю.Калусу за консультации и помощь при конструировании камеры ВД, А.В.Белушкину, Я.Вонсицкому, В.Зайонцу и К.Холдерне-Матускевич за техническую помощь и обсуждение результатов тестовых измерений, Ю.М.Останевичу и Е.А.Янику за стимулирующий интерес в создании этой установки.

ЛИТЕРАТУРА

1. Carlie C.J., Saltar D.C., High Temp. - High Pressure, Vol.10, 1-27, 1978.
2. Bloch D., Voiron J. "Condensed Matter Research Using Neutrons Today Tomorrow" NATO ASI, Series B: Physics, Vol.112, p.39-62, 1984.
3. Ananiev V.D. et al. In: The Neutron and its applications 1982, ed.P.Schofield, Bristol and London, Inst. Phys. Conf. Ser., No.64, p.497.
4. Балуха Г. и др. Сообщение ОИЯИ Р13-84-242, Дубна, 1984.
5. Браньковский Е., Вайдхазе Ф., Елизаров О.И., Залески Т., Иваньски В., Натканец И., Олеярчик В., Сообщение ОИЯИ, 1987, Р11-87-273, Дубна,
6. Смирнов Л.С., Новиков А.П., Алеханов Р.А., Никитин А.А., Хитров Д.М. ИТЭФ-137, Москва, 1979.
7. Raucheau I., Vettier C. Rev. Sci. Instrum.46, 1484-1488, 1975.
8. Алеханов Р.А., Балагуров А.М., Бескровный А.И., Иванов А.Н., Савенко Б.Н., Сангаа Д., Смирнов Л.С. Сообщение ОИЯИ, Р14-86-594, Дубна, 1986.
9. Kalus J., Physikalisches Institut der Universitat Bayreuth, 1980.
10. Vettier C., Yelon W.B. J. of Physics and Chemistry of Solids, Vol.36, 401, 1975.

Рукопись поступила в издательский отдел
10 мая 1988 года.

Хабрыло С. и др.
Установка для нейтронных исследований конденсированных сред под высоким давлением на спектрометре обратной геометрии

P3-88-315

Для исследования свойств конденсированных сред в зависимости от давления и температуры создана экспериментальная установка на спектрометре КДСОГ-М, позволяющая одновременно измерять спектры как дифракции /ДН/, так и неупругого некогерентного рассеяния нейтронов /ННРН/. Установка включает в себя: газовый компрессор GCA-10A с максимальным давлением 1500 МПа, систему передачи и контроля давления в экспериментальной камере, гелиевый криостат с автоматическим регулятором температуры в пределах от 10 до 300 К для термостатирования камеры образца. Приведены технические и физические параметры созданной аппаратуры, а также некоторые результаты измерений для когерентно (CCl₄) и некогерентно (C₆H₁₁OH, d-C₁₀H₁₆O) рассеивающих образцов при давлениях до 400 МПа, с целью демонстрации экспериментальных возможностей.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1988

Перевод О.С.Виноградовой

Habylo S. et al.
A Setup for Neutron Investigation of Condensed Matter Under High Pressure at Reverse Geometry Spectrometer

P3-88-315

In order to enable neutron scattering investigations of various properties of condensed matter under high pressure at different temperatures, the KDSOG-M spectrometer has been equipped with a special setup. It permits to measure simultaneously spectra of neutron diffraction and inelastic incoherent scattering. The setup contains: the GCA-10A gas compressor with a maximum pressure of 1500 MPa, a specially designed high pressure cell with the system to feed and measure the pressure, a liquid helium cryostat with a temperature controller capable of stabilizing the temperature of the pressure cell within the range of 10K - 300K. Technical and physical parameters of the setup are reported along with some experimental results obtained for a coherent scatter (CCl₄) and an incoherent one (C₆H₁₁OH, d-C₁₀H₁₆O) under the pressure of 400 MPa.

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

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1988