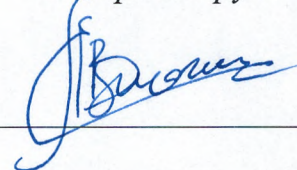


ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ ИМ. И.М.ФРАНКА

На правах рукописи



Лычагин Егор Валерьевич

**Отражатели очень холодных и холодных нейтронов на основе
ультрадисперсных алмазов**

Специальность 1.3.2 - Приборы и методы экспериментальной физики

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Дубна – 2023

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики им. И.М.Франка
Объединенного института ядерных исследований

Научный консультант *Несвижевский Валерий Викторович, доктор физико-математических наук, научный сотрудник отдела ядерной физики и физики частиц Института Лауэ-Ланжевена (г. Гренобль, Франция)*

Официальные оппоненты *Воронин Алексей Юрьевич, доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник Лаборатории теоретической ядерной физики Физического института им. П.Н. Лебедева РАН РФ (г. Москва)*

Левченко Александр Алексеевич, член-корреспондент РАН, доктор физико-математических наук, директор Института физики твердого тела им. Ю.А. Осипяна РАН (г. Черноголовка),

Фёдоров Валерий Васильевич, доктор физико-математических наук, профессор, заведующий лабораторией рентгеновской и гамма-спектроскопии Отделения нейтронных исследований, ФГБУ Петербургский институт ядерной физики им. Б.П.Константинова НИЦ «Курчатовский институт» (г. Гатчина)

С электронной версией диссертации можно ознакомиться на официальном сайте Объединенного института ядерных исследований в информационно-телекоммуникационной сети «Интернет» по адресу: <https://dissertations.jinr.ru>. С печатной версией диссертации можно ознакомиться в Научно-технической библиотеке ОИЯИ (г. Дубна, Московская область, ул. Жолио-Кюри, д. 6).

Ученый секретарь диссертационного совета ОИЯИ.04.01.2022.П,
кандидат физико-математических наук

Т.И.Иванкина

Общая характеристика работы

Актуальность темы

Нейтронная физика в широком смысле, включающая в себя не только вопросы изучения свойств нейтрона, но и вопросы атомной энергии, изучения ядерных реакций с нейтронами, применения нейтронного рассеяния для изучения физики конденсированного состояния вещества, решения прикладных задач с использованием нейтронов остаётся актуальной и развивающейся областью исследований. Её развитие связано с появлением новых, сложных методик исследований, с ростом интенсивности нейтронных источников (наиболее интенсивные из них - исследовательские реакторы, источники на основе сильноточных ускорителей с большой энергией протонов и реакции скалывания), освоением новых диапазонов энергий используемых нейтронов.

Во всем мире существует выраженная тенденция к расширению диапазона используемых нейтронов в направлении меньших скоростей (больших длин волн), которая стимулируется исследованиями крупномасштабных (свыше 100 нм) пространственных корреляций в конденсированных средах (проводимых, прежде всего, на малоугловых дифрактометрах и рефлектометрах и установках с реализацией соответствующих методик нейтронного спин-эха), а также исследованиями в области фундаментальной физики, физики элементарных частиц и т.п.

На сегодняшний день в исследованиях широко используются ультрахолодные нейтроны (УХН) и холодные нейтроны (ХН). Характерные скорости для УХН ~ 5 м/с [1]. Доступные потоки УХН чрезвычайно низки; однако свойство полного отражения делает их уникальным инструментом в фундаментальной нейтронной физике [2]. ХН широко используются в рассеянии нейтронов и физике частиц из-за их гораздо более высоких потоков, чем у УХН. Длины волн ХН немного больше межатомных расстояний; таким образом, брэгговское рассеяние в твердых телах начинает исчезать, и материя начинает становиться более “прозрачной”. Это явление широко применяется для создания фильтров холодных нейтронов [3]. Типичная скорость ХН составляет ~ 500 м/с. Промежуточный диапазон очень холодных нейтронов (ОХН) с характерной скоростью ~ 50 м/с используется редко: потоки этих нейтронов, доступные для экспериментов, гораздо меньше, чем у ХН, и они не могут храниться в ловушках, в отличие от УХН. Причина

резкого уменьшения потока ОХН кроется в свойствах нейтронных отражателей, использующихся при формировании нейтронных потоков.

Нейтронные отражатели имеют очень большое значение в нейтронной физике. Основное их назначение заключается в уменьшении потерь нейтронов и направлении нейтронных потоков в нужное место. Хорошо известны реакторные отражатели, позволяющие увеличить эффективность использования рождающихся в активной зоне нейтронов путём уменьшения их утечки через боковую поверхность зоны [4], а также нейтронные зеркала [5] и суперзеркала [6]. Суперзеркала позволяют увеличить критический угол для отражаемых нейтронов, но являются технологически сложными в производстве и обладают ещё двумя недостатками: первый заключается в том, что они имеют низкую радиационную стойкость и не могут быть использованы в начальных участках нейтронных трубопроводов, второй — отражение от них не является чисто зеркальным. Это отклонение от зеркальности не велико в области тепловых нейтронов, но в области ОХН, становится существенным. Отражатели нейтронов играют ключевую роль, поскольку они экономичным и эффективным образом повышают производительность источников нейтронов и систем транспортировки.

На Рис. 1. показана вероятность отражения нейтронов различных энергий от трех указанных выше видов отражателей при изотропном падении нейтронов на поверхность.

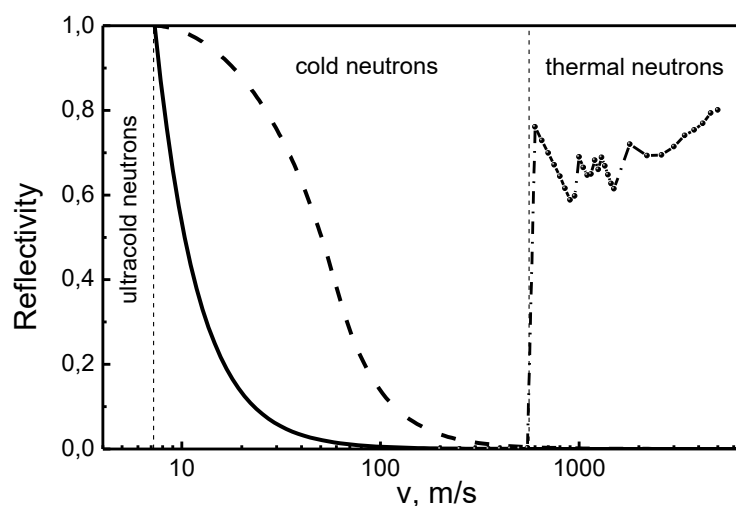


Рис. 1 Вероятность отражения для изотропного потока нейтронов показана как функция скорости нейтронов для различных отражателей: 1) Алмазоподобное покрытие (DLC) (сплошная линия), 2) Лучшее суперзеркало [7] (штриховая линия), 3) реакторный графитовый отражатель при комнатной температуре с бесконечной толщиной (штрихпунктирная линия).

Как видно из Рис. 1, имеется большой провал отражающей способности существующих отражателей в ОХН.

В данной работе исследовалась возможность создания эффективных отражателей ОХН в нижней половине так называемого “зазора отражательной способности”, которые должны позволить повысить потоки ОХН, извлекаемые из источников нейтронов, и, возможно, обеспечить хранение ОХН в замкнутых объёмах для проведения исследований. Решение этой проблемы открывает перспективы для широкого использования ОХН в нейтронной физике.

Кроме того, оказалось, что предложенные отражатели ОХН могут быть использованы для отражения ХН под малыми скользящими углами. В этом случае наблюдается так называемое квазизеркальное отражение — отражение, при котором отраженный пучок имеет относительно узкое угловое распределение с максимумом в примерно зеркальном направлении. При этом углы отражения оказываются соизмеримы с углами доступными для суперзеркал с самыми большими критическими углами, а угловое распределение отраженных нейтронов зависит от длины волны/скорости нейтронов и параметров отражателя. Сам материал отражателя оказывается радиационно стойким. Таким образом, данные отражатели могут быть также полезны при создании систем извлечения ХН из источников.

Цели работы состоят в изучении возможности создания эффективных отражателей ОХН, определении путей улучшения характеристик этих отражателей; развитии экспериментальных методов измерения коэффициента отражения ОХН; разработке моделей для расчёта вероятности отражения; определении возможности расширения энергетического диапазона эффективного отражения нейтронов в область ХН.

В соответствии с целями работы поставлены следующие основные задачи:

1. Определение физического принципа и выбор материала для создания отражателя ОХН;
2. Создание экспериментальной установки для точного измерения коэффициента отражения ОХН;
3. Разработка метода для изучения свойств материалов отражателей;
4. Экспериментальное изучение возможности отражения ХН при малых скользящих углах падения;

5. Экспериментальное определение эффективности предложенных отражателей для увеличения потока ОХН;
6. Определение путей улучшения свойств отражателей.

Основные результаты и положения, выносимые на защиту:

1. Предложено использовать в качестве перспективного материала для создания отражателей ОХН ультрадисперсные алмазы детонационного синтеза (ДНА). На основании ДНА созданы первые эффективные отражатели ОХН.
2. Методом хранения ОХН измерен рекордный коэффициент отражения ОХН от слоя ультрадисперсных алмазов, полученных методом детонационного синтеза (ДНА).
3. Определены существенные для отражения нейтронов примеси ДНА и влияние замещения водорода фтором на отражение ОХН от порошка ДНА.
4. Определено влияние размеров ДНА и изменение структуры порошка ДНА на его отражательную способность.
5. Продемонстрирована возможность квазизеркального отражения ХН от слоя наноалмазного порошка, и рассчитан возможный выигрыш в потоках ХН при использовании такого отражателя. Полученные результаты могут быть использованы для проектирования и создания более эффективных нейтронных установок и источников.
6. Экспериментально продемонстрирована возможность увеличения направленного потока ОХН в ~ 10 раз при помощи предложенных отражателей. Использование отражателей ОХН и ХН нового типа позволит заметно увеличить потоки нейтронов в выведенных пучках нейтронных источников и расширить область применения нейтронов

Научная новизна

Публикации, в которых представлены результаты данного исследования, являются пионерскими в данной области. До сих пор не существовало эффективных отражателей ОХН и порошки ДНА не исследовались с точки зрения их использования для нужд нейтронной физики.

Предложенная методика измерения альбедо от слоя порошка ДНА методом удержания квази-моноэнергетических нейтронов никогда ранее не использовалась для

ОХН. При этом впервые реализовано экспериментальное удержание ОХН в широком диапазоне скоростей (до 160 м/с) в компактном замкнутом объёме.

Впервые наблюдался эффект квазизеркального отражения ХН от слоя нанодисперсного порошка.

Предложена математическая модель структуры порошка ДНА для описания его рассеивающей способности. На основании этой модели получены новые данные о влиянии размеров наночастиц и процесса деагломерации порошка на альbedo ОХН.

В работе впервые предложена геометрия источника ОХН с использованием отражателей, позволяющая получить выигрыш в потоке извлекаемых ОХН примерно на порядок.

Научная и практическая ценность работы

Полученные в работе результаты открывают широкие перспективы для создания отражателей ОХН на основе ДНА. Показано, что промышленные ДНА после специальной обработки могут быть использованы в качестве материала отражателей. Указаны направления развития технологии производства и обработки ДНА для оптимизации отражателей (очистка от определённых загрязнений, производство наночастиц с определёнными размерами и порошков с уменьшенным содержанием агломератов).

Развитый в работе метод изучения рассеяния нейтронов порошками ДНА позволяет вести подбор оптимальных параметров порошков, и экспериментально-расчётным образом определять альbedo от порошка, синтезируя небольшие (порядка грамма) пробные образцы, и может быть использован при решении аналогичных задач.

Полученные экспериментальные данные подтверждают выводы о перспективности применения предложенных отражателей для увеличения потоков и плотности ОХН.

Апробация работы

Результаты диссертации были представлены на ежегодных международных семинарах по исследованию взаимодействия нейтронов с ядрами ISINN (2008, 2018, 2019, 2021), на международных рабочих совещаниях GRANIT (2010, Лез-Уш, Франция), SLON (2016, Гренобль, Франция), на VII европейской конференции по нейтронному рассеянию ECNS (2019, Санкт-Петербург, Россия), на международной конференции по перспективным углеродным наноматериалам ACNS (2019, Санкт-Петербург, Россия), на

международной конференции по нейтронному рассеянию ICNS (2022, Буэнос-Айрес, Аргентина), семинарах ЛНФ ОИЯИ.

Публикации

Результаты диссертации, представляемые к защите, содержатся в 13 научных статьях, в том числе 11 из них опубликованы в рецензируемых журналах, включенных в систему цитирования Web of Science, одна статья опубликована в иностранном реферируемом журнале и одна в виде раздела книги.

Личный вклад автора

Экспериментальные и основные теоретические результаты, изложенные в диссертации и относящиеся к измерениям с очень холодными нейтронами, получены автором, в основном, лично, а также в научных коллективах при его непосредственном участии, а также аспирантами и коллегами при его непосредственном руководстве, где автором сформулированы тема, задачи исследований и способ проведения измерений. При его непосредственном участии разработаны существенные части экспериментальных установок. Он также является ответственным соавтором почти во всех статьях.

При непосредственном руководстве автора создана установка по измерению изотопного состава образцов на 11б канале реактора ИБР-2 и получены результаты по содержанию примесей, в том числе примесей водорода, в исследуемых ДНА.

Автор принимал непосредственное участие в постановке задач, организации измерений с помощью малоуглового рассеяния нейтронов и других методов исследований ДНА, результаты которых приведены в работе.

Результаты работы получены автором в сотрудничестве с коллегами из Лаборатории нейтронной физики Объединённого института ядерных исследований (Дубна Россия), Института Лауэ-Ланжевена (Гренобль, Франция), Физико-технического института им. А.Ф.Иоффе (Санкт-Петербург, Россия), Химического института Клермон-Феррана (Овернь, Франция), Национального Исследовательского Центра “Курчатовский Институт” (Москва, Россия), Национального института стандартов и технологий (Гейтерсберг, США), Университета штата Северная Каролина (Роли, США).

Структура и объём диссертации

Диссертация состоит из введения, 6-ти глав, заключения и списка используемых библиографических источников. Полный объём диссертации составляет 182 стр., включает в себя 91 рисунок, 6 таблиц, список из 157-ми библиографических источников.

Краткое содержание работы

Во введении обосновывается актуальность темы диссертационной работы, формулируются цели и задачи исследования, приводятся результаты, выносимые на защиту. Дается характеристика научной новизны и практической ценности работы. Излагается структура и краткое содержание работы.

В первой главе сформулирована основная идея для создания отражателей ОХН — использовать неоднородную среду с масштабом неоднородности порядка длины волны отражаемых нейтронов. Для ОХН это масштаб порядка нанометров. Материал для такой среды можно подобрать, проанализировав выражения для сечений рассеяния и захвата. Очевидно, что сечение рассеяния должно быть максимальным, а захвата — минимальным.

При рассмотрении взаимодействия ОХН с наночастицей можно не учитывать брэгговское рассеяние. В этом случае для описания взаимодействия нейтрона с наночастицей можно использовать модель рассеяния на однородной неподвижной сфере радиуса R , состоящей из тысяч ядер. Падающий нейтрон взаимодействует только со средним потенциалом частицы, который можно записать в виде:

$$V(\mathbf{r}) = \begin{cases} V = V_0 - iV_1 & \text{если } r < R \\ 0 & \text{если } r > R \end{cases} \quad (1)$$

В качестве потенциала V можно взять усреднённый по объёму частицы потенциал Ферми [8], а мнимая часть потенциала учитывает возможность захвата нейтрона:

$$V_0 = 2\pi \frac{\hbar^2}{m} \sum_j \rho^{(j)} b^{(j)} \quad (2)$$

$$V_1 = \frac{\hbar^2}{m} \sum_j \rho^{(j)} b^{(j)} \sigma_a^{(j)}(k_0) k_0, \quad (3)$$

где суммирование ведётся по различным типам ядер в наночастице, в каждом слагаемом суммы $\rho^{(j)}$ это количество ядер типа (j) на единицу объёма, $\sigma_a^{(j)}(k_0)$ – сечение захвата теплового нейтрона для ядер типа (j) , k_0 – волновой вектор теплового нейтрона.

Используя первое борновское приближение [9] и оптическую теорему [10], можно получить выражения для сечения захвата и рассеяния на наночастице в системе центра масс:

$$\sigma_s = \int |f(\theta)|^2 d\Omega = 2\pi \left| \frac{2m}{\hbar^2} V \right|^2 R^6 \frac{1}{(kR)^2} I(kR), \quad (4)$$

где

$$I(kR) = \int_0^{2kR} \frac{1}{x} j_1(x) dx = \frac{1}{4} \left(1 - \frac{1}{(kR)^2} + \frac{\sin(2kR)}{(kR)^3} - \frac{\sin^2(kR)}{(kR)^4} \right), \quad (5)$$

$$\sigma_a = \frac{4\pi}{3} \frac{2m}{\hbar^2} V R^4 \frac{1}{kR}. \quad (6)$$

С использованием выражений (2), (3) в работе [11] были вычислены параметры потенциала для наночастиц из различных материалов с малым сечением захвата нейтронов. Эти результаты представлены в Табл. 1.

Таблица 1. Параметры потенциала наночастиц

| Наночастица | Плотность вещества, г/см ³ | V_0 , нЭВ | V_1 , 10 ⁻⁶ нЭВ |
|------------------|---------------------------------------|-------------|------------------------------|
| D ₂ | 195 | 101 | 2,2 |
| D ₂ O | 1020 | 153 | 2,7 |
| O ₂ | 1230 | 70 | 0,64 |
| CO ₂ | 1560 | 101 | 6,0 |
| С (алмаз) | 3520 | 306 | 45 |
| Be | 1850 | 250 | 68 |

При этом из формулы (4) видно, что сечение рассеяния пропорционально квадрату потенциала. Приведённые в первых четырёх строках Таблицы 1 материалы требуют низких температур (19 К, 277 К, 55 К, 195 К соответственно) для их существования. Из нижних двух строчек однозначно следует, что алмаз намного более перспективный материал, чем бериллий.

Далее можно проанализировать, какими должны быть размеры алмазных наночастиц для получения максимального альбеда. Этот размер должен обеспечивать максимальное транспортное сечение $\sigma_{tr} = \sigma_s(1 - \langle \cos\theta \rangle)$, которое зависит как от величины сечения рассеяния, так и от среднего косинуса угла рассеяния θ .

Для определения оптимального размера частиц можно воспользоваться известными решениями для альбеда от полубесконечной среды, полученными при решении диффузионного уравнения (см., например, [12]) которое в пределе малых потерь совпадает с решением, полученным при использовании алгебраического метода расчёта альбеда [13]:

$$R_\infty = \frac{\sqrt{\sigma_a + \sigma_{tr}} - \sqrt{\sigma_a}}{\sqrt{\sigma_a + \sigma_{tr}} + \sqrt{\sigma_a}}$$

Используя это выражение и выражения для соответствующих сечений в описанном приближении, можно оценить оптимальный диаметр наночастиц, который соответствует максимальному альбеда.

Рисунок 2 иллюстрирует рассчитанные оптимальные размеры частиц и соответствующие максимальные значения альбедо в зависимости от скоростей нейтронов в диапазоне от 20 до 200 м/с.

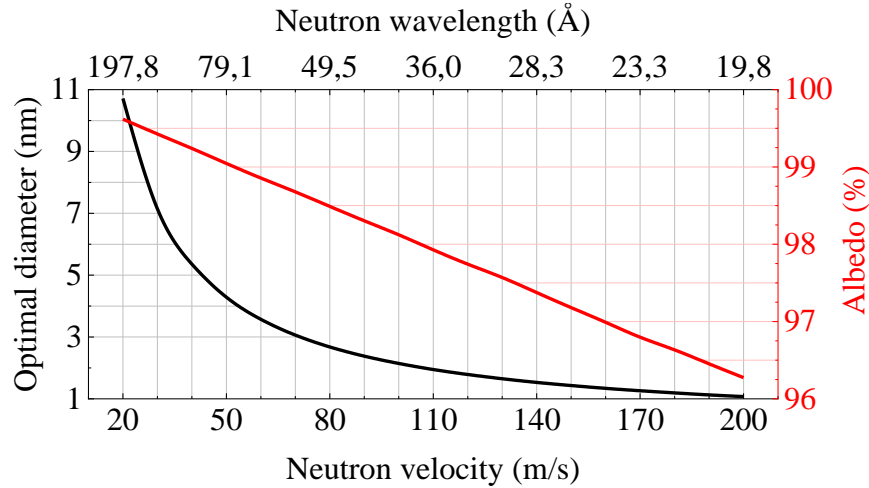


Рис. 2 Оптимальные диаметры алмазных наночастиц (черная линия) в зависимости от скорости ОХН/длины волны. Сплошной красной линией показано соответствующее рассчитанное альбедо ОХН для оптимальных диаметров алмазных наночастиц. Нейтроны поглощаются только атомами углерода.

Для алмазных шаров оптимальный диаметр частиц $D_{opt} = 2R_{opt}$ связан с длиной волны нейтронов λ и скоростью нейтронов v следующим образом [14]:

$$D_{opt}[\text{нм}] \approx 0,54\lambda[\text{нм}] \approx 215/v [\text{м/с}]. \quad (7)$$

В частности, для типичной скорости ОХН ~ 50 м/с оптимальный диаметр частиц составляет $\sim 4,3$ нм.

Масса алмазной наночастицы с радиусом 1 нм примерно в 10^5 раз тяжелее нейтрона. Следовательно, отдачей наночастицы при рассеянии нейтрона можно пренебречь и считать рассеяние абсолютно упругим.

Таким образом, простые оценки показывают, что достаточно толстый слой порошка алмазных наночастиц с размером (диаметром) равным нескольким нанометрам должен давать большое альбедо для ОХН. В то же время этот порошок будет мало эффективен для тепловых и холодных нейтронов [14]. Конечно, реальная ситуация намного сложнее, в изложенном простейшем рассмотрении никак не учитывалось, что реальные наночастицы могут иметь различную форму, в порошке частицы могут иметь распределение по размерам, могут объединяться в агломераты и т.д.

Счастливым случаем является то, что существует технология производства алмазов с размерами близкими к оптимальным – наноалмазы детонационного синтеза или детонационные наноалмазы (ДНА), они и исследуются в данной работе. Технология получения ДНА впервые была разработана более 60 лет назад [15], однако и в настоящее время только эта технология позволяет получать порошки алмазов в макроскопических объёмах, необходимых для создания отражателей.

ДНА сочетают в себе уникальные характеристики, которые нужны для отражателя: большую длину когерентного рассеяния углерода 6,65 ф, и, соответственно, большое сечение когерентного рассеяния – 5,55 барн, малое сечение поглощения – 3,5 мбарн и большую ядерную концентрацию атомов углерода, соответствующую алмазной форме углерода.

ДНА получают методом подрыва взрывчатых веществ, содержащих атомы химических элементов С, Н, N и О, в металлических камерах. Образующиеся кристаллы имеют относительно узкое распределение по размерам с характерным размером ~ 4-5 нм [16 - 19]. Структура частицы ДНА обычно представляется в модели ядро-оболочка [20]: в виде алмазного ядра (sp^3 -гибридизация атомов углерода) в форме многогранника [21], окруженного С-оболочкой (с sp^3 - sp^2 -гибридизацией атомов С). На поверхности оболочки присутствуют группы С–Нх, С–С–Н, С–ОН, С–О, С=C [22]. Промышленный порошок ДНА имеет сложную иерархическую структуру агрегатов. Характерный состав примесей в порошке это Fe, Cr, Zn, Na, W. Из неметаллических примесей важную роль могут играть Н, В, Cl. Водород имеет большое сечение неупругого рассеяния и большое по отношению к углероду сечение нейтронного захвата. Бор и хлор тоже хорошо известны как захватчики нейтронов. Гидрофильные свойства ДНА, предположительно, обусловлены группами –ОН и –СООН, находящимися на поверхности.

Влияние примесей на рассеяние возможно в основном за счёт изменения формы оптического потенциала, с этой точки зрения опасение вызывает главным образом водород, который обладает отрицательной длиной рассеяния. При этом примеси, захватывающие нейтроны, приводят к росту потерь нейтронов внутри порошка и соответствующему уменьшению альбедо. Металлические примеси являются потенциальным источником наведённой активности, что может привести к серьёзным ограничениям на использование такого материала в интенсивных нейтронных полях.

Для проверки предположения об эффективном отражении ОХН от порошка ДНА был проведён эксперимент [А1] по пропусканию ОХН через тонкие слои ДНА.

Измерения проводились на пучке ОХН инструмента PF2 [23] реактора ИЛЛ (Гренобль, Франция). Принципиальная схема установки представлена на Рис. 3 (вид сверху). Две диафрагмы из борной резины толщиной 5 мм формировали нейтронный пучок в горизонтальной плоскости. Между диафрагмами установлен механический селектор скоростей.

Образец помещался в пучок нейтронов после выходной диафрагмы так, чтобы нейтроны падали по нормали к плоскости образца. Образец находился в центре детектирующей системы, состоящей из 11 нейтронных счётчиков, регистрирующих рассеявшиеся на образце нейтроны. Один из счётчиков в отсутствие образца регистрировал падающий нейтронный пучок. Телесный угол всей детектирующей системы $\sim \pi/6$.

Эффективность нейтронных счётчиков для нейтронов со скоростью 100 м/с составляла около 40%, а для нейтронов со скоростями 40 м/с $\sim 70\%$. Эффективность счётчиков была откалибрована с использованием стабильного нейтронного пучка. Разброс в эффективности счётчиков не превышал 5%.

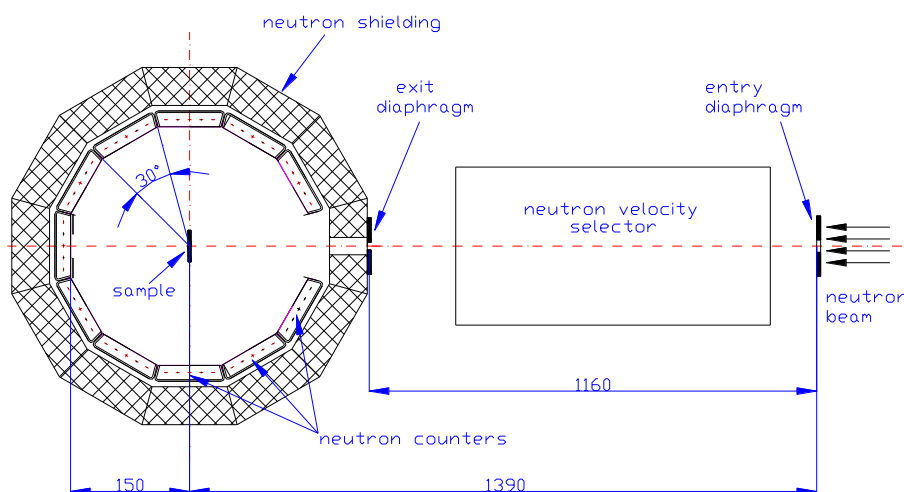


Рис. 3 Схема измерений (вид сверху)

Селектор скоростей позволяет выделять из пучка нейтроны с определёнными скоростями в диапазоне от 30 м/с до 160 м/с. Спектры пропускаемых селектором нейтронов были измерены методом времени пролёта. Разрешение селектора зависит от

скорости и составляет ~10% для самых быстрых нейтронов и ~25% для самых медленных. Корректность определения средней скорости нейтронов была проверена зависимостью поглощения пучка нейтронов воздухом от скорости вращения селектора. Полученная зависимость сечения от скорости следует хорошо известному закону $1/v$ [24].

В качестве образца был использован порошок ДНА (Ultradiamond90 [25]) с известным от производителя распределением по размерам. Было приготовлено четыре образца толщиной 0,2, 0,4, 2 и 6 мм с плотностью $0,60 \pm 0,03$ г/см³.

Были измерены угловые зависимости для нейтронов, рассеянных на образцах Ultradiamond 90 различной толщины, и в широком диапазоне скоростей ОХН (от 35 до 160 м/с).

Для анализа измеренных данных было проведено моделирование эксперимента методом Монте-Карло с учётом геометрии и параметров установки. При описании взаимодействия нейтронов с наночастицами использовалась модель независимых покоящихся сферических частиц с известным распределением по размерам. Для расчёта сечений рассеяния и захвата использовались выражения (4) и (6). Предположительный химический состав наночастицы включал: углерод (до 88% от общей массы), водород (1,0%), азот (2,5%), кислород (до 10%) [26]. Рассеяние нейтронов на водороде в среднем не приводит к увеличению энергии нейтрона вплоть до диапазона тепловых энергий («нагрев» нейтронов); нагретые нейтроны не так эффективно взаимодействуют с наночастицами и, следовательно, проходят через порошок. Поскольку количество водорода не было точно известно, это количество рассматривалось как свободный параметр в модели.

На Рис. 4 результаты моделирования сравниваются с вероятностями, измеренными для прямого и обратного рассеяния ОХН на образцах всех измеренных толщин. Два набора кривых соответствуют расчету с использованием наночастиц чистого углерода (пунктирные линии) и расчету с добавлением 1% водорода (сплошные линии). При моделировании предполагается, что водород равномерно распределен в образце, а зависимость сечение для (изотропного) неупругого рассеяния от скорости нейтрона v следует закону $1/v$. Также предполагается, что нейтроны выходят из образца, сразу после неупругого рассеяния.

В широком диапазоне скоростей ОХН и толщин образца получено хорошее качественное согласие между результатами измерений и предсказаниями модели

независимых наночастиц в состоянии покоя. Полная вероятность отражения ОХН с наименьшими скоростями близка к 100%, если учесть телесный угол использованной детектирующей системы. Настоящий анализ можно рассматривать как первую качественную проверку.

В дополнение, методом времени пролёта были измерены спектры рассеянных нейтронов и спектр падающего пучка. Средняя начальная скорость нейтронов в этом измерении была равна 60 м/с. Из сравнения спектров следует, что общее среднее изменение скорости в результате рассеяния на образце не превышает ± 1 м/с. Таким образом, экспериментально продемонстрировано, что рассеяние ОХН на наночастицах в основном упругое.

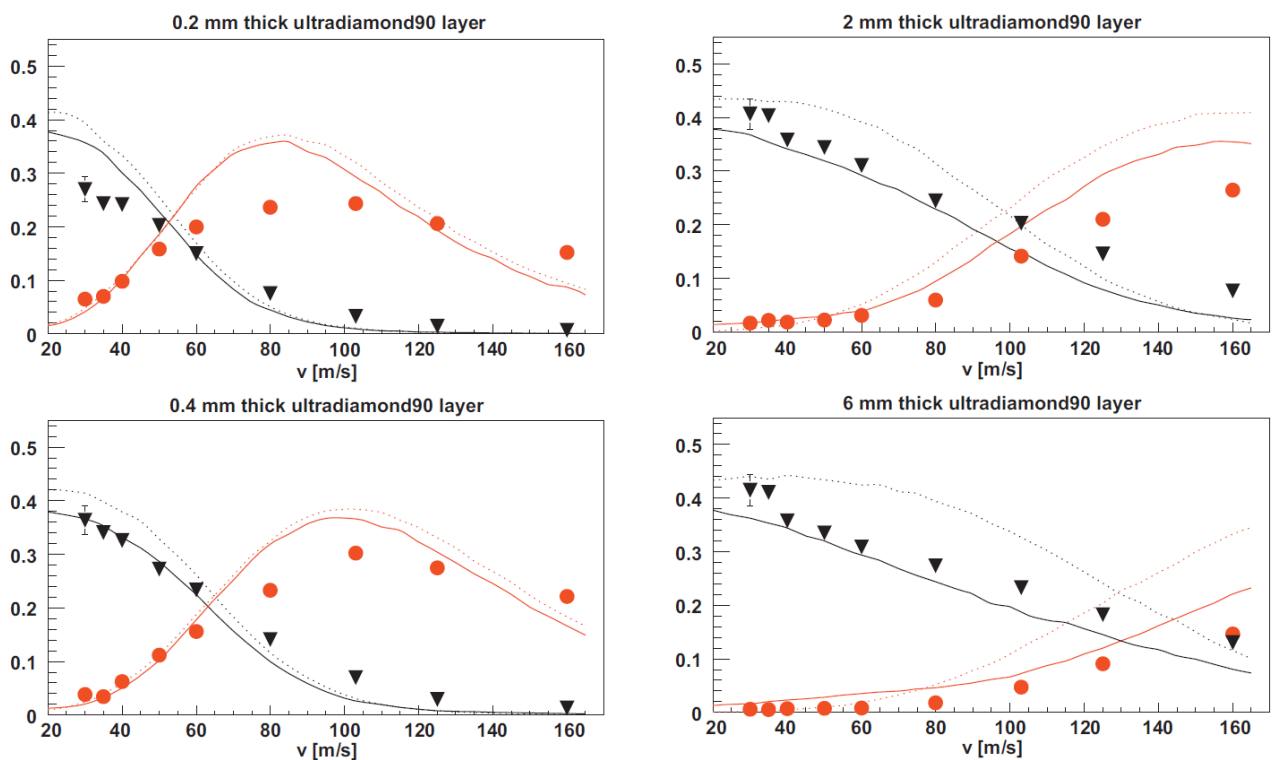


Рис. 4 Зависимости вероятности регистрации рассеянных ОХН на Ultradiamond90 в переднюю полусферу (сумма событий в детекторах, расположенных под углами 30° , 60° , 300° , 330°) и заднюю полусферу (сумма событий в детекторах, расположенных под углами 120° , 150° , 210° , 240°) от скорости для различных толщин порошка. Треугольники соответствуют измеренной вероятности обратного рассеяния ОХН. Кружки – вероятности рассеяния ОХН вперёд. Пунктирные линии соответствуют модели независимых наночастиц в состоянии покоя без учёта потерь на примесях водорода. Сплошными линиями обозначена модель с учётом «нагрева» ОХН на водородных примесях.

Во второй главе описывается эксперимент, в котором было реализовано хранение ОХН в ловушке со стенками из ДНА и из экспериментальной зависимости времени удержания от скорости нейтронов вычислена соответствующая зависимость альбедо [41]. Для реализации эксперимента был приобретён коммерчески доступный порошок нанодиазмов, произведённый и очищенный ФГУП «РФЯЦ – ВНИИТФ им. академ. Е.И. Забабахина» (г. Снежинск) согласно ТУ 2-037-677-94.

Измерения проводились на пучке ОХН инструмента PF2 [23] реактора ИЛЛ (Гренобль, Франция). Принципиальная схема установки представлена на Рис. 5.

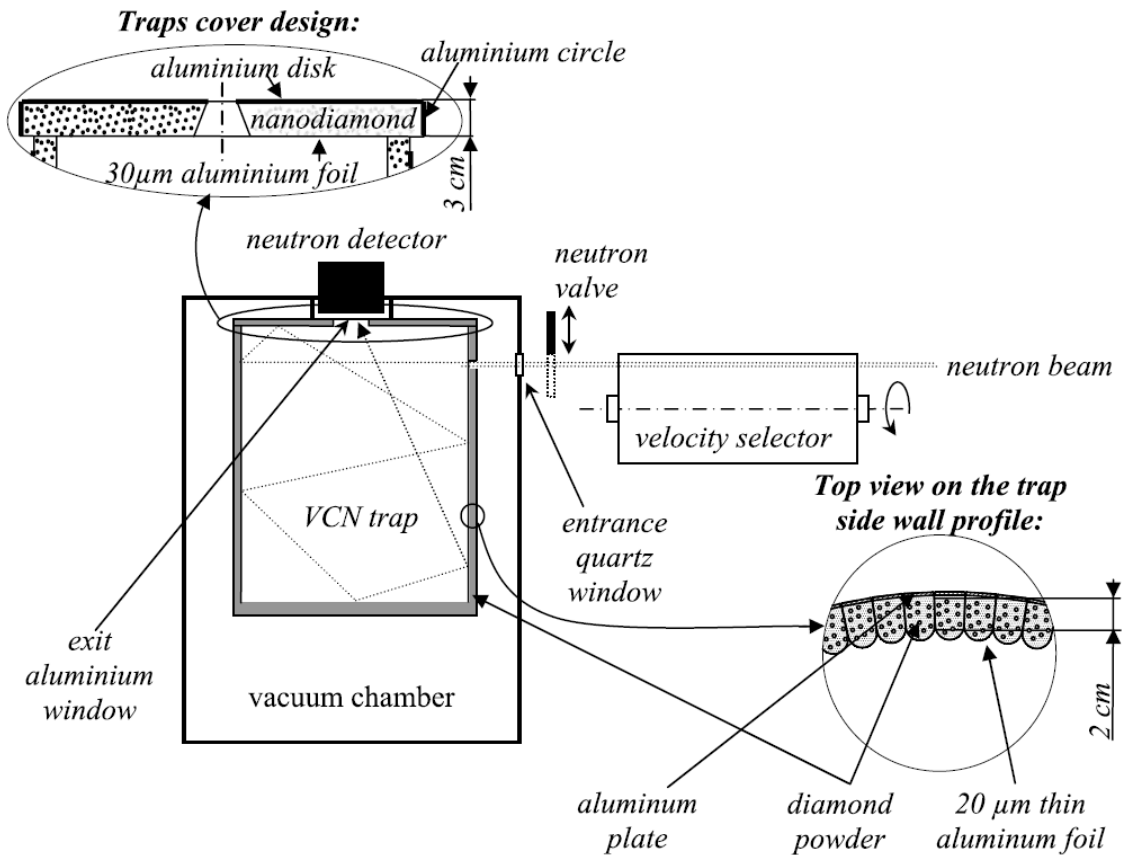


Рис. 5 Схема эксперимента с хранением ОХН.

В цилиндрическую полость ловушки, которая имеет диаметр ~ 44 см и высоту ~ 47 см, через маленькое отверстие (2×2 см²) в боковой стенке входит коллимированный пучок нейтронов диаметром 1 см. Нейтроны, многократно отражаясь от стенок ловушки, могут попасть в выходное отверстие в потолке ловушки диаметром 6 см и зарегистрироваться расположенным за отверстием детектором. Пучок нейтронов может закрываться и открываться быстрой заслонкой с покрытием из кадмия (толщина кадмия 0,2 мм). Скорость нейтронов в пучке определяется селектором скоростей, расположенным перед заслонкой. Ловушка помещена в вакуумную камеру с входным

кварцевым окошком (толщиной 3 мм) и выходным алюминиевым окном (толщиной 1 мм). Когда пучок ОХН закрыт, скорость счёта детектора уменьшается экспоненциально вслед за плотностью ОХН в ловушке. Таким образом можно измерить время хранения ОХН в зависимости от их скорости. Эксперимент заключается в измерении постоянной времени спада скорости счёта детектора после перекрывания пучка нейтронов на входе в ловушку в зависимости от скорости нейтронов.

Детали конструкции экспериментальной установки можно найти в [А2].

Пример зависимости скорости счёта детектора в цикле измерений для нейтронов со скоростью 85 м/с представлен на Рис. 6. Фон детектора вычтен. На этом же рисунке сплошная линия представляет временную зависимость пропускания заслонкой света в относительных единицах. От задающего генератора в момент времени $t = 0$ запускается временной анализатор, на 50-ой миллисекунде от этого же генератора открывается, а на 250-ой миллисекунде закрывается заслонка. После открытия заслонки ловушка наполняется нейтронами до равновесной плотности, а после того, как заслонка перекрывает пучок, эта плотность падает экспоненциально с постоянной времени равной времени хранения нейтронов в ловушке. Эта постоянная определяется в основном потерями нейтронов на стенках ловушки, так как суммарная площадь входного и выходного отверстий в ловушке не превышает 0,3% от полной площади поверхности ловушки. Постоянная времени хранения для представленного на Рис. 6 случая составляет $(19,0 \pm 0,5)$ мс.

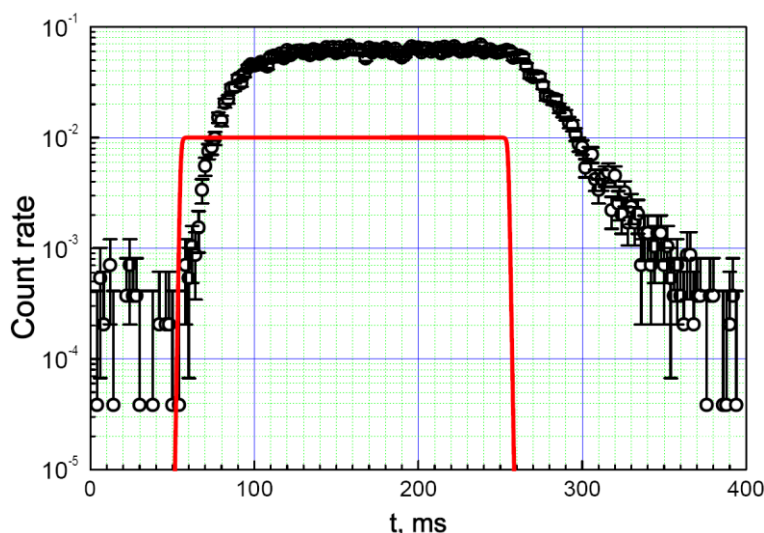


Рис. 6 Зависимость скорости счёта нейтронов во время цикла измерений для скорости ОХН 85 м/с. Сплошной линией показана зависимость светового сигнала в относительных единицах измерения, используемого для синхронизации заслонки с циклом измерения.

Аналогичные измерения были проведены для различных скоростей в трёх сериях измерений. Первая серия измерений была проведена при комнатной температуре после длительной (в течение 12 часов) откачки при комнатной температуре. Затем вакуумная камера была заполнена аргоном до 1 атм., и ловушка прогревалась при температуре $\sim 120^\circ\text{C}$ в течение 3 часов. После этого аргон из ловушки был откачан, ловушка остыла до комнатной температуры, и была проведена вторая серия измерений. Третья серия измерений была проведена при нагретой в вакууме до $\sim 145^\circ\text{C}$ ловушке при постоянной откачке. Измерения в этой серии были начаты, когда показания термопар были зафиксированы, а скорость счёта детектора при открытом пучке нейтронов со скоростью 160 м/с перестала изменяться. Падение этой скорости счёта при фиксированном показании термопар расценивалось как постепенный прогрев порошка в стенках ловушки. Времена хранения самых быстрых нейтронов в третьей серии не измерялись, так как они слишком малы. Результаты измерения показали, что дегазация ловушки не увеличивает время хранения нейтронов по сравнению с ловушкой с откачкой, хотя повышение температуры ловушки до 150°C (30% по абсолютной шкале) снижает время хранения нейтронов на 30%. Вероятно, это связано с увеличением потерь нейтронов из-за неупругого рассеяния на прочно связанном с алмазом водородом (он не удаляется дегазацией при 150°C).

Для описанной выше геометрии ловушки длина свободного пробега ОХН для всех скоростей нейтронов может быть оценена следующим образом, пренебрегая малыми гравитационными поправками:

$$\Delta x = 22 \pm 1 \text{ см.}$$

При оценке сделано предположение об изотропности потока нейтронов в ловушке, учтена сложная форма боковой поверхности ловушки и глубина проникновения нейтронов в порошок. Данная оценка менее достоверна для нейтронов более быстрых энергий из-за нарушения изотропности и роста глубины проникновения.

Вероятность отражения ОХН от стенки ловушки в таком случае будет равна:

$$P(v) = 1 - \frac{\Delta x}{\tau_{st}^{VCN}(v) \cdot v} \cdot (1 - \varepsilon), \quad (8)$$

где ε - геометрический коэффициент, равный отношению вероятности потерь ОХН во входном и выходном окнах к суммарной вероятности потерь в ловушке, его величина равна $3,5 \times 10^{-3}$. Ошибки в этой оценке задаются неопределенностью времени хранения, неопределенностью среднего пробега Δx и неопределенностью скорости нейтронов. Эта вероятность характеризует способность стенок ловушки отражать нейтроны. Таким

образом, сюда входят потери в алюминиевой фольге и влияние геометрической формы стенок ловушки. Эта оценка предполагает изотропное угловое распределение нейтронов в ловушке, что не совсем верно для быстрых нейтронов.

Для того чтобы скорректировать данную оценку и извлечь из неё альбедо для порошка необходимо учесть потери ОХН в алюминиевой фольге, а также форму боковой поверхности. С этой целью были проведены расчёты методом Монте-Карло с использованием модели независимых покоящихся частиц. Рассчитанная по формуле $1 - \varepsilon_{\text{O}}^{\text{O}}$, (8) и скорректированная на основе моделирования отражающая способность показана на Рис. 7 как зависимость альбедо от порошка ДНА от скорости нейтронов. Исходные результаты измерения времён удержания при комнатной температуре двух серий были усреднены.

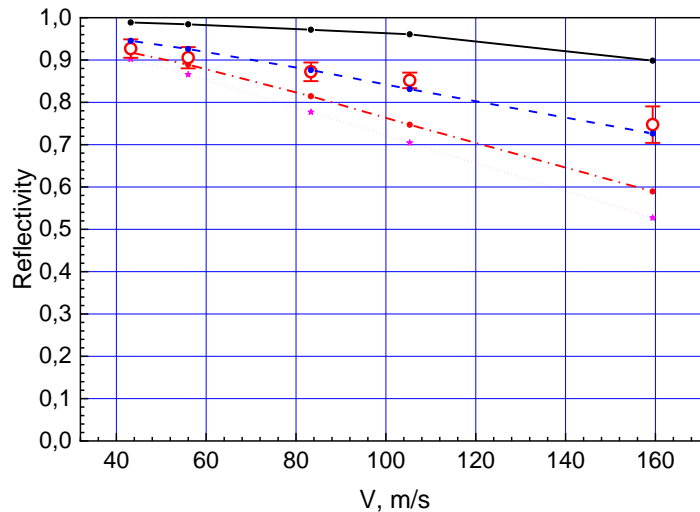


Рис. 7 Вероятность отражения ОХН от слоя наночастиц при температуре окружающей среды в зависимости от их скорости. Незакрашенные кружки соответствуют измерениям при комнатной температуре. Тонкие линии соответствуют расчетам методом Монте-Карло с учетом неупругого рассеяния на водороде, при различных значениях сечения неупругого рассеяния, приведённого к скорости нейтронов 2200 м/с: 4 барна для розовой пунктирной линии, 3 барна для красной штрихпунктирной линии, 1,3 барна для пунктирной синей линии и 0 барн для черной линии.

На Рис. 7 показаны также результаты моделирования методом Монте-Карло, в рамках упомянутой модели, альбедо от порошка при фиксированном количестве водорода $C_{15}H$ (0,5% от общей массы). Это количество было взято из литературы и оказалось близким к значению, полученному в работе [А6]. При моделировании предполагалось, что распределение частиц по размерам такое же, как и для Ultradiamond90, сечение неупругого рассеяния подчиняется правилу $1/v$, а в качестве

свободного параметра рассматривается значение сечения σ_{ie}^H для скорости нейтрона 2200 м/с. Расчет хорошо воспроизводит зависимость коэффициента отражения от скорости; свободный параметр при наилучшем описании экспериментальных данных равен $\sigma_{ie}^H = 1,3$ барн.

Полученные результаты для альbedo можно сравнить со значениями для других отражателей, которые были представлены на Рис. 1. Результат данного сравнения представлен на Рис. 8

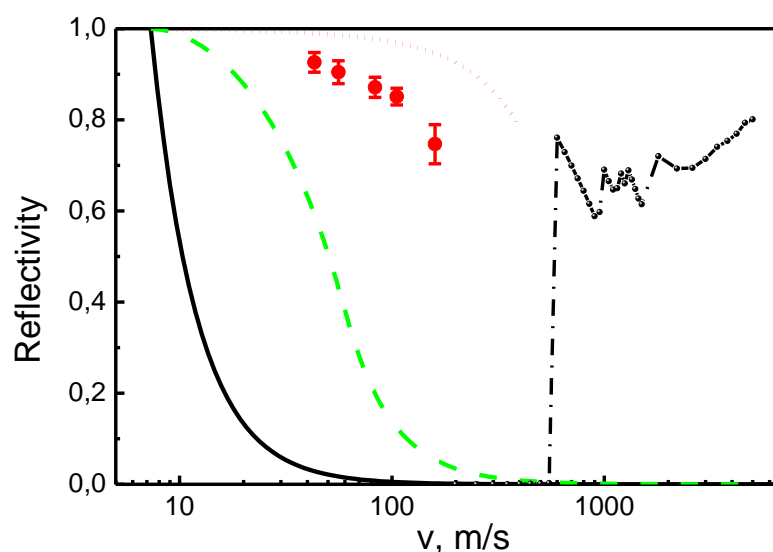


Рис. 8 Вероятность упругого отражения потока изотропных нейтронов в зависимости от скорости нейтронов для различных отражателей на основе углерода: 1) алмазоподобное покрытие (тонкая сплошная линия), 2) лучшее суперзеркало [7] (штриховая линия), 3) безводородный порошок Ultradiamond90 [25] бесконечной толщины (пунктирная линия), расчет 4) отражение ОХН от алмазного нанопорошка толщиной 3 см при температуре окружающей среды (точки) со значительным загрязнением водородом, эксперимент, 5) Расчет стандартной программой «Monte Carlo N-Particle®» (MCNP) для реакторного графитового отражателя [27] с бесконечной толщиной при температуре окружающей среды (штрихпунктирная линия).

Как видно из этого рисунка, максимальная энергия отраженного ОХН и вероятность отражения, полученные экспериментально, намного превышают соответствующие значения для лучших имеющихся в настоящее время суперзеркал. Таким образом, отражатель наночастиц в значительной степени перекрывает энергетический разрыв между эффективными реакторными отражателями тепловых и холодных нейтронов и оптическим потенциалом для УХН.

В третьей главе обсуждаются примеси в ДНА и в первую очередь примеси атомов водорода, которые ухудшают свойства порошка ДНА как отражателя нейтронов. Можно найти большое количество статей, посвящённых изучению типа химических связей водорода на поверхности ДНА и изучению гигроскопичности ДНА. Обычно при исследовании водорода в ДНА используют методы, которые позволяют проводить относительные измерения, но испытывают затруднения при абсолютизации (ИК-спектроскопия, комбинационное рассеяние света и т.п.). Для определения абсолютного количества водорода в порошке были проведены измерения методом регистрации мгновенных гамма-квантов на нейтронном пучке, затем по неупругому рассеянию нейтронов было определено количество водорода, который не удаётся удалить очисткой (откачкой или прогревом до 150°C при постоянной откачке), и который в основном химически связан с углеродом [A4]. Исследовался порошок наноалмазов, изготовленный ФГУП РФЯЦ-ВНИИТФ (г.Снежинск) согласно ТУ 2-037-677-94 (партия 1-96, изготовлен 09.02.96). Этот же порошок был использован в работах [A2, A4]. Затем было измерено полное сечение взаимодействия нейтронов с водородом.

Принципиальная схема измерений абсолютного количества водорода по мгновенным гамма-квантам представлена в работе [A2]. Измерения выполнены на нейтронном пучке высокопоточного реактора ИЛЛ, Гренобль, Франция (инструмент ADAM [28]).

Измерялась интенсивность пика полного поглощения при регистрации гамма-квантов из реакции $n(pd)\gamma$ ($E_\gamma=2,223\text{МэВ}$) от образцов наночастиц и сравнивалась с интенсивностью такого же пика от образца, количество атомов водорода в котором было известно (для этого калибровочного измерения использовался образец полиэтилена). По относительному счёту в пике определялось количество водорода в образцах. Поскольку образцы с порошком были помещены в алюминиевые контейнеры, проведены дополнительные измерения с алюминием соответствующей толщины. Спектры нейтронов, рассеянных на порошке, вычислены вычитанием результатов двух измерений. При вычислении соотношения атомов водорода и углерода были сделаны поправки, учитывающие толщины образцов и эффект самопоглощения как для нейтронов, так и для гамма-квантов. Эти поправки были определены путём моделирования геометрии эксперимента методом Монте-Карло и во многом определяют точность измерений. В результате были получены следующие соотношения углерода и водорода в образцах:

- образец, очищенный от водорода прогревом в вакууме:

$$C_{12,4\pm 0,2}H \quad (n_C/n_H = 12,4\pm 0,2);$$

- неочищенный от водорода образец:

$$C_{7,4\pm 0,15}H \quad (n_C/n_H = 7,4\pm 0,15).$$

Полное сечение взаимодействия с водородом было определено методом пропускания. Измерение выполнено на том же нейтронном пучке, схема эксперимента представлена на Рис. 9.

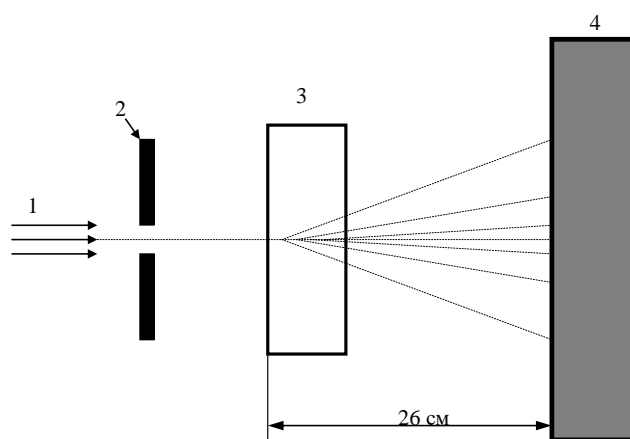


Рис. 9. Схема измерения полного сечения рассеяния нейтронов.

(1) – пучок нейтронов; (2) – диафрагма; (3) – образец; (4) – позиционно-чувствительный детектор нейтронов.

Монохроматический пучок нейтронов (1) с длиной волны $4,4 \text{ \AA}$ диаметром 11 мм формируется диафрагмой из борной резины (2). Плоскость образца (3) перпендикулярна пучку. Позиционно чувствительный детектор (4) с чувствительной областью размером $25 \times 25 \text{ см}^2$ установлен на расстоянии 26 см от передней стенки образца.

Предполагается, что нейтроны рассеиваются на алмазных наночастицах на малые углы, а рассеяние на атомах водорода изотропно. Поэтому расстояние от образца до детектора было выбрано так, чтобы все нейтроны, прошедшие сквозь образец без рассеяния, а также рассеявшиеся на наночастицах, попали в чувствительную область детектора. Для того чтобы убедиться в этом, были проведены дополнительные измерения с другими расстояниями от образца до детектора. Часть изотропно-рассеянных нейтронов попадала в детектор, что учитывалось при обработке экспериментальных данных. Брэгговское рассеяние нейтронов (первого порядка) на кристаллах алмаза отсутствует, так как длина волны нейтронов $4,4 \text{ \AA}$ превышает максимальное значение, соответствующее брэгговскому рассеянию на алмазе, равному $4,119 \text{ \AA}$ (для отражения (111)).

Полученные значения для сечения рассеяния σ_{sc}^H представлены в Табл. 2. Приведённые погрешности обусловлены главным образом точностью оценки абсолютной величины измеренной концентрации водорода; точность относительных измерений при разных температурах на одном и том же образце существенно выше. Сечение захвата нейтронов с длиной волны 4,4 Å водородом составляет 0,81 барн, что учитывалось при обработке экспериментальных данных.

Таблица 2. Экспериментальное значение сечения рассеяния нейтронов на водороде.

| Образец | Сечение рассеяния на атом водорода, барн |
|--|--|
| Полиэтилен | 172±1.5* |
| Очищенный от водорода образец при 300К | 108±2 |
| Очищенный от водорода образец при 80К | 105±2 |
| Неочищенный от водорода образец при 300К | 109±2 |

*сечение приведено на молекулу CH₂

Полученные значения сечений рассеяния нейтронов на тестовом образце полиэтилена хорошо согласуются с результатами работ, приведённых в библиотеке ядерных данных ENDF (например, [29]).

По спектрам неупругого рассеяния нейтронов (Рис. 10 и Рис. 11), измеренных на спектрометре IN1-BeF [30], на основании результатов работ [31-34] и работ, цитируемых в этих публикациях, было установлено, что энергия пика при ~360-365 мэВ соответствует энергии колебаний в направлении связи С-Н (точное значение зависит от типа гибридизации spⁿ связи), тогда как область интенсивного пика между 125 и 180 мэВ соответствует колебаниям с «изгибом» связи С-Н (интервал 260-350 мэВ примерно соответствует вкладу многофононных процессов от этой «основной» зоны). Таким образом, количество С-Н связей в образцах с термообработкой и без нее практически неизменно.

Наибольшие отличия спектров колебаний неочищенных и очищенных от водорода образцов на Рис. 10 и Рис. 11 наблюдаются в окрестности энергии ~70 мэВ: интенсивный сигнал неупругого рассеяния в исходном материале существенно подавляется после термообработки. Небольшие температурные изменения спектров термообработанного образца могут быть отнесены на счет изменения фактора заселенности колебательных

состояний, тогда как в исходном материале заметны количественные и качественные изменения сигнала неупругого рассеяния нейтронов.

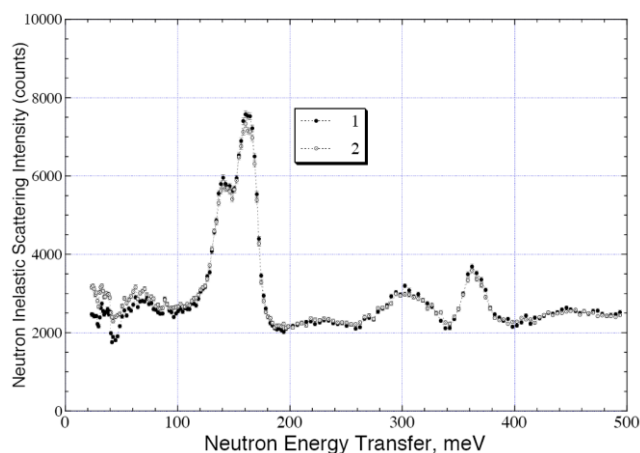


Рис. 10 Спектр возбуждений очищенного от водорода алмазного порошка в диапазоне энергий 25-500 мэВ при температурах 15 К (1), и 300 К (2).

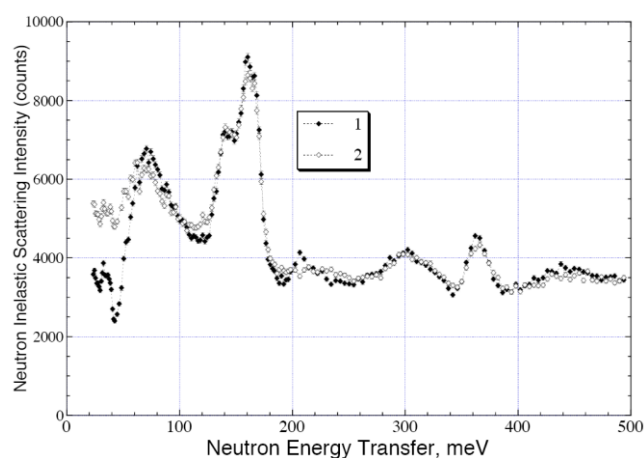


Рис. 11 Спектры возбуждений исходного алмазного порошка в диапазоне энергий 25-500 мэВ 15 К (1) и 300 К (2)

Из разности спектров для неочищенного и очищенного от водорода образцов можно получить представление о спектрах колебательных возбуждений тех веществ, которые были удалены при прогреве и откачке. Сопоставление полученных таким образом энергетических зависимостей при температурах 300 К и 15 К со спектрами возбуждений для воды и льда, измеренных ранее в близких экспериментальных условиях, указывает на то, что при термической обработке с откачкой из порошка наноалмазов был удален водород в составе молекул воды, адсорбированных в необработанном порошке.

Чтобы очистить наноалмазы от примесей атомов водорода и, соответственно, увеличить эффективность отражения нейтронов от порошка наноалмазных частиц, авторами работы [35] была проведена химическая обработка порошка: газо-твердое фторирование. Такая химическая обработка привела к более чем тридцатикратному уменьшению количества химически связанного водорода во фторированном порошке (Ф-ДНА), что было измерено по мгновенным гамма-квантам реакции $n(p,d)\gamma$. Соотношение водорода и углерода сразу после очистки соответствует формуле $C_{430\pm 30}H$. Гидрофильность порошка также уменьшилась в ~ 30 раз, что было подтверждено гравиметрическим методом.

Для проверки возможного накопления водорода в порошке Ф-ДНА после длительного (~ 3 года) хранения его в воздушной атмосфере в Лаборатории нейтронной

физики им. И.М.Франка на 11б канале реактора ИБР-2 была создана экспериментальная установка для определения изотопного состава образцов по мгновенным гамма-квантам [А12]. Измерения показали, что содержание водорода возросло почти в 10 раз. Данный результат означает, что после фторирования порошок должен храниться в инертной атмосфере для сохранения своего качества.

Изучение фторированных и исходных порошков ДНА методом нейтронно-активационного анализа (НАА) показывают, что они содержат большое количество примесей металлов и неметаллов. Примеси металлов химической очисткой могут быть доведены до состояния, когда потери нейтронов на них становятся пренебрежимо малыми по сравнению с захватом на азоте и самом углероде. Однако надо иметь в виду, что даже небольшое количество металлов в интенсивных нейтронных полях может привести к заметной активации, а учитывая, что масса порошка в реальном отражателе достаточно велика (порядка килограммов), к заметной активности отражателя. Поскольку порошок ДНА является довольно летучим, работы с активированным порошком могут оказаться затруднены.

Необходимо отметить следующие обстоятельства. Если считать, что процесс фторирования в основном решает проблему водорода (необходимо убедиться в стабильности фтора при радиационных нагрузках), то следующими важными с точки зрения потерь нейтронов примесями, являются азот, возможно, бор (он не определяется НАА, но был замечен в измерениях с регистрацией мгновенных гамма-квантов), хлор (возникающий при очистке порошков от металлов). Азот находится внутри кристаллов алмаза и удалить его без изменения технологии производства алмазов представляется затруднительным. Бор является достаточно распространённым элементом, и даже незначительная его примесь (десятки ppm) может заметным образом изменить свойства порошка из-за большого (3835 барн [36]) сечения захвата изотопа ^{10}B , который присутствует в естественной смеси в заметном (20%) количестве.

Таким образом, представляет интерес разработка технологии очистки порошка ДНА от металлов с контролем примеси галогенов (В, Сl) или разработка технологии производства наноалмазов, позволяющая изначально получать порошки без примеси водорода, азота и металлов.

Четвёртая глава посвящена изучению влияния фторирования ДНА, деагломерирования ДНА и изменения размера ДНА на рассеяние нейтронов и альbedo ОХН. Для этого исследования было использовано несколько специально приготовленных образцов:

исходный необработанный порошок ДНА (производства РФЯЦ ВНИИТФ), фторированный исходный порошок ДНА – Ф-ДНА, деагломерированный фторированный порошок (деагломерация производилась после фторирования) – ДФ-ДНА и сепарированный деагломерированный исходный порошок – С-ДНА. Все образцы были исследованы набором различных методов: сканирующей (СЭМ) и просвечивающей (ПЭМ) электронной микроскопией, рентгеновской дифракцией (РД), динамическим рассеянием света (ДРС), малоугловым нейтронным рассеянием (МУРН) для получения информации об изменении размеров и структуры ДНА в процессе приготовления образцов. Все эти исследования и сравнения их результатов подробно описаны в работах [A9, A10, A11].

При выборе методов изучения ДНА было учтено, что основной целью исследования является описание диффузии нейтронов в порошке ДНА. Таким образом, МУРН является основным методом изучения порошка, поскольку он позволяет описать рассеяние нейтронов на ДНА. Другие методы дополняют друг друга и использовались для подтверждения эффекта различных процедур, которые были применены для модификации образцов (фторирование, разделение по размерам и т.д.).

Кривые МУРН измерялись с использованием различных установок, в разных научных центрах для получения достоверных данных в максимально широком диапазоне переданных импульсов и для абсолютной калибровки. По данным МУРН реальная среда была аппроксимирована модельной. Основной целью этой аппроксимации является определение параметров модели из максимально точного описания всех данных МУРН. После этого модель может быть использована для экстраполяции экспериментальных данных в диапазоне скоростей и углов, недоступные для прямых измерений МУРН. Такая модель позволяет описать диффузию нейтронов в порошках ДНА во всех интересующих диапазонах скоростей и углов.

Модель заключалась в замене реальной среды (порошка ДНА) набором алмазных наночастиц с дискретным распределением по размерам. Как ДНА, так и их кластеры в этой модели заменяются на наночастицы из алмаза различных размеров. Был выбран дискретный набор размеров наночастиц, в котором радиусы любого наночастицы и следующего за ним наночастицы связаны определённым соотношением. Радиусы равномерно распределены по логарифмической шкале, с 20 значениями радиуса на порядок величины.

Доля шаров каждого размера в наборе подбирается таким образом, чтобы наилучшим способом описать экспериментальные данные МУРН. Процедура подгонки устойчива относительно выбора параметров модели (начальное распределение шаров по размерам, набор размеров шаров; шаг увеличения размера шаров; границы диапазона размеров, если он достаточно широк).

При анализе распределения алмазных наночастиц по размерам следует учитывать, что реально существующие кластеры значительно отличаются по плотности от алмаза и имеют форму, которая не совпадает с идеальным шаром. Сечение рассеяния нейтронов на реальном кластере меньше, чем сечение рассеяния на идеальном алмазном шаре. Следовательно, количество кластеров больше, чем получено в нашей модели, во столько раз, во сколько раз больше сечение рассеяния. При этом для расчета диффузии нейтронов в алмазных нанопорошках модель алмазных наночастиц дает хорошее приближение. Соответственно, общая масса, сконцентрированная в алмазных наночастицах, оцененная в рамках нашей модели, оказывается ниже общей массы порошка. Эта особенность эффективным образом учитывает несколько факторов: присутствие в порошке углерода в неалмазных формах (sp^2); элементов, отличных от углерода; рассеяние порами; разницу между формой алмазных ядер ДНА и идеальных шаров; интерференцию рассеяния на соседних ДНА и т.д. В некотором смысле эта простая модель кластеризации аналогична разложению математической функции в ряд на простые базисные функции. Амплитуда каждого члена разложения непосредственно не отражает физическую реальность, но позволяет проанализировать общее поведение исследуемой функции. Эффективная масса порошка, оцененная таким образом, является полезной характеристикой. Она дает массовую долю порошка, которая эффективно участвует в рассеянии нейтронов. Оставшаяся масса эффективно участвует в потере нейтронов, но не участвует в рассеянии. Чем больше эффективная масса, тем выше эффективность порошка ДНА для отражения нейтронов.

Образцы сравнивались парами для определения влияния конкретной процедуры обработки на альбедо: сравнение необработанного ДНА и Ф-ДНА определило влияние процедуры фторирования; сравнение Ф-ДНА и ДФ-ДНА определило влияние процесса деагломерации; сравнение ДФ-ДНА и С-ДНА определило влияние размера частиц в порошке.

Процесс фторирования не повлиял никак ни на размер кристаллов, ни на состав примесей, ни на структуру агломератов. Этот вывод следует из всех исследований, выполненных всеми доступными из перечисленных методов. Несмотря на замену

водорода, частично углерода и кислорода на фтор, что могло бы несколько изменить форму потенциала, этого изменения нет и на картине малоуглового рассеяния.

На Рис. 12 а) показана интенсивность рассеяния нейтронов в зависимости от переданного импульса для необработанного ДНА и Ф-ДНА. Рис. 12 б) иллюстрирует сравнение измеренных и смоделированной интенсивностей, а на Рис. 12 с) показана плотность распределения вероятностей объёмов наночастиц, оцененная в рамках модели.

Процесс деагломерации также не привёл к изменению размеров кристаллов и состава примесей, но уменьшил количество агломератов, и, возможно, структуру пористости, что отразилось на кривых МУРН и модельных распределениях шаров. Важным результатом деагломерации стало увеличение насыпной плотности порошка с $0,19 \text{ г/см}^3$ для Ф-ДНА до $0,56 \text{ г/см}^3$ для ДФ-ДНА.

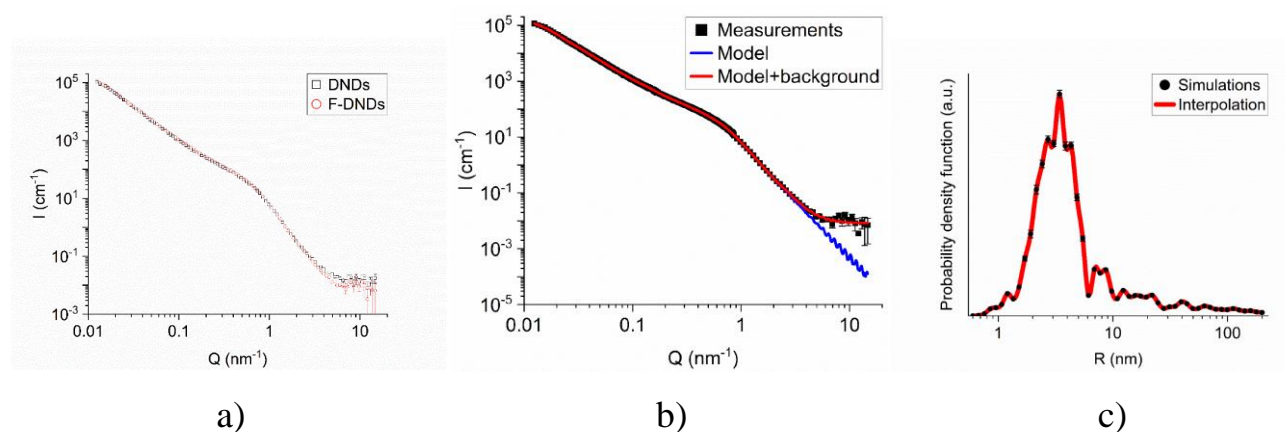


Рис. 12. а) Измеренная интенсивность I (см^{-1}) рассеянных нейтронов в зависимости от переданного импульса Q (нм^{-1}) для образцов ДНА и Ф-ДНА показана черными квадратами и красными кружками соответственно. Для удобства сравнения результаты данные отнормированы к равной плотности образцов;

б) Зависимости, представленные на Рис. 12 а) в сравнении с модельными кривыми; тонкая синяя линия показывает результаты моделирования, а толстая красная линия дополнительно учитывает вклад фона на уровне $9 \cdot 10^{-3} \text{ нм}^{-1}$.

с) Плотность распределения вероятностей объёмов наночастиц, оцененная в рамках модели алмазных наночастиц для образца Ф-ДНА. Черными кружками показаны результаты моделирования. Красная сплошная линия интерполирует результаты моделирования.

Как показывают расчёты, разница в кривых рассеяния практически не влияет на альбедо от полубесконечной среды. Однако для отражателя конечной толщины или отражателя в виде сферической полости оказывается существенен фактор плотности. Этот результат иллюстрируется на Рис. 13 где показано альбедо нейтронов от стенок

сферической полости в зависимости от скорости нейтронов и радиуса полости как для порошка Ф-ДНА, так и для порошка ДФ-ДНА при реальных плотностях порошков.

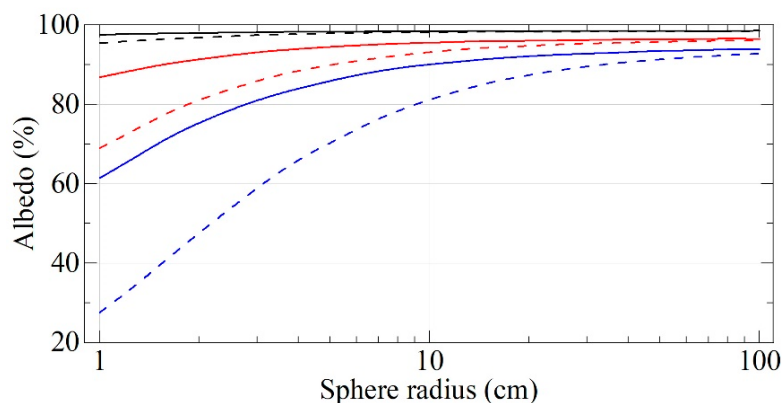


Рис. 13. Альбеда нейтронов для скоростей 50 м/с (черные линии), 100 м/с (красные линии) и 150 м/с (синие линии) для Ф-ДНА (пунктирные линии) и ДФ-ДНА (сплошные линии) в зависимости от радиуса полости. Падающие нейтроны изотропны, толщина порошка бесконечна, а плотности порошков ДФ-ДНА и Ф-ДНА равны 0,19 и 0,56 г/см³ соответственно.

Изменение размеров частиц при сепарации было подтверждено и в измерениях на СЭМ, и методом РД, и методом МУРН. Существенных изменений в химическом составе порошка замечено не было. Кроме изменения среднего размера частиц сепарирование привело к дальнейшему увеличению насыпной плотности порошка с 0,56 г/см³ для ДФ-ДНА до 0,67 г/см³ для С-ДНА. Кривые МУРН и распределения модельных шаров, описывающие эти кривые показаны на Рис. 14.

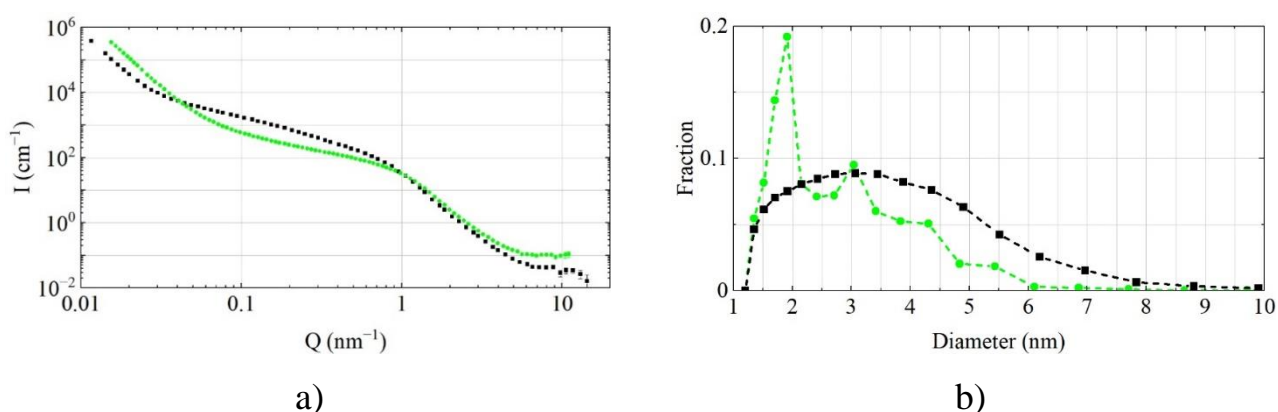


Рис. 14. а) Интенсивность I (см⁻¹) рассеяния нейтронов в зависимости от переданного импульса Q (нм⁻¹) для ДФ-ДНА (черные квадраты) и С-ДНА (зеленые круги). Чтобы сравнить только влияние размеров частиц, а не плотности порошка, обе кривые нормированы к плотности образца 1 г/см³. б) Модельное распределение алмазных шаров по размерам для С-ДНА (зеленые круги) и ДФ-ДНА (черные квадраты). Точки соответствуют результатам расчета.

Расчёт альбедо показывает, что на языке фактора потерь (отличие альбедо от единицы) изменение размера частиц играет заметную роль (см. Рис. 15). Меньшие частицы дают выигрыш при малых длинах волн и позволяют расширить диапазон эффективного отражения в сторону более быстрых нейтронов, но они проигрывают в области медленных нейтронов, где более крупные частицы позволяют уменьшить фактор потерь. Уменьшение размеров частиц возможно в ~ 3 раза. Ещё более мелкие алмазы не существуют. Увеличение размеров частиц более чем в 3 раза нецелесообразно, так как бóльшие частицы эффективны для нейтронов со скоростями в области УХН, для которых эффективней отражение от оптического потенциала.

Моделирование также показывает, что аналогично ситуации с деагломерацией, дальнейший рост насыпной плотности порошка в результате сепарирования приводит к росту альбедо при конечной толщине отражателя или при форме отражателя в виде полости.

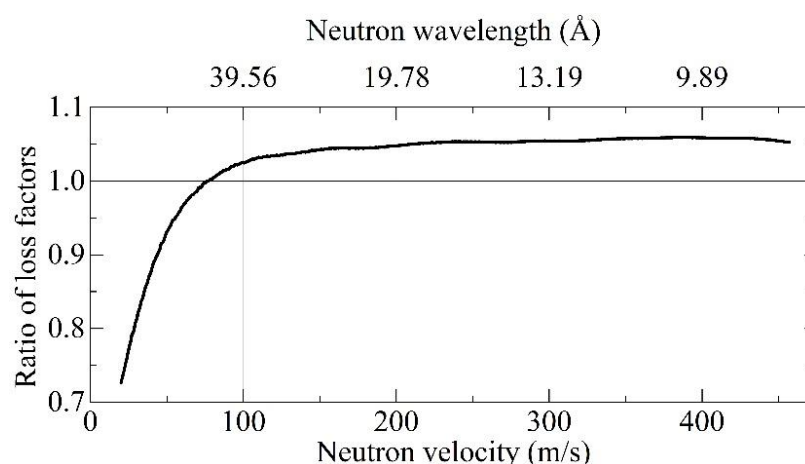


Рис. 15. Соотношение коэффициентов потерь $\eta_{(ДФ-ДНА)}/\eta_{(С-ДНА)}$ при отражении от плоских полубесконечных сред ДФ-ДНА и С-ДНА в зависимости от скорости нейтронов.

В пятой главе рассмотрен вопрос о возможности использования изучаемых отражателей на основе порошков ДНА для отражения нейтронов больших (по сравнению с ОХН) энергий. Из рассмотрения аналогичных физических процессов, когда излучение распространяется в среде, испытывая многократное малоугловое рассеяние (в [37] этот процесс описан аналитически в общем виде), сделано предположение, что порошки ДНА с характерными размерами наночастиц 4–5 нм должны квазизеркально отражать холодные нейтроны (ХН) при малых скользящих углах. Под квазизеркальным отражением подразумевается отражение, при котором наиболее вероятный угол

отражения, как и полуширина углового распределения диффузно отраженных нейтронов, примерно равен углу падения. В эксперименте [A5] это явление впервые наблюдалось, а в работе [A8] было изучено, как повлиял процесс фторирования порошка ДНА на данное явление.

Оба измерения были выполнены на рефлектометре D17 [38] в Институте Лауэ-Ланжевена (Гренобль, Франция) с использованием метода времени пролёта. Схемы измерений были похожи и детально описаны в работах [A5, A8]. Главное отличие экспериментов заключалось в способе приготовления образцов. В первом случае само явление наблюдалось на необработанном порошке, помещённом в кювету из алюминия с тонким (100 мкм) входным окном под откачкой. Во втором случае и необработанный, и фторированный порошки помещались в кювету с тонким (180 мкм) окном из монокристаллического кремния.

Измерялась вероятность квазизеркального отражения нейтронов в зависимости от длины волны нейтронов (λ), угла падения (1° , 2° , 3°) и угла отражения. Стандартное двумерное представление данных рефлектометрии на Рис. 16 показывает интегральный эффект фторирования – показана вероятность отражения нейтронов в пределах телесного угла детектора при сравнительных измерениях с образцами ДНА и Ф-ДНА.

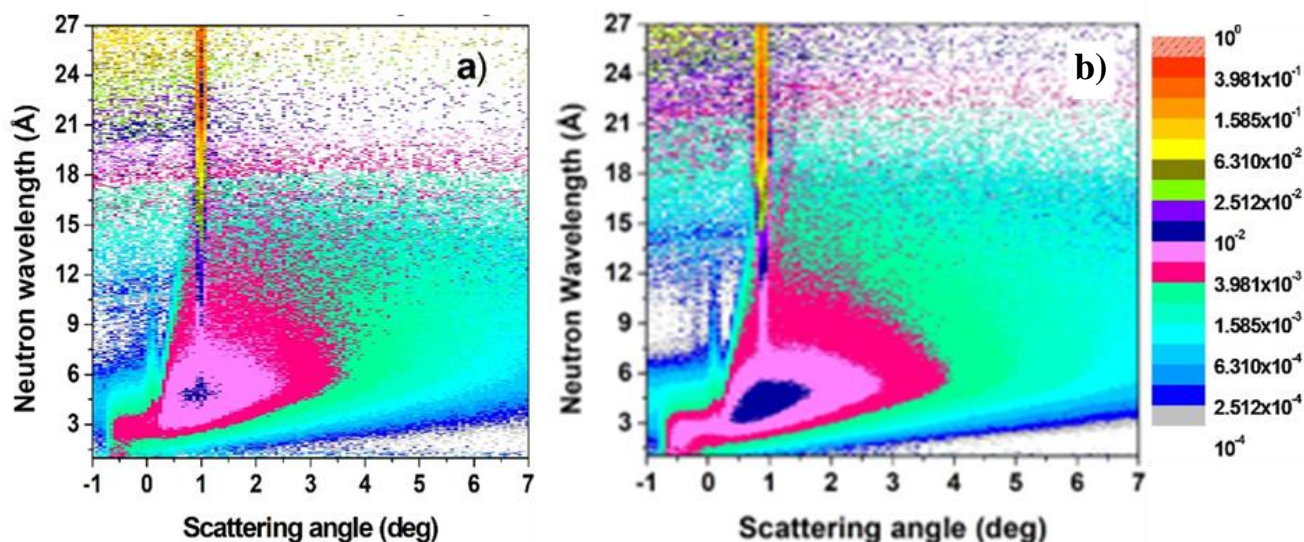


Рис. 16 Вероятность рассеяния нейтронов с поверхности порошков ДНА (слева) и Ф-ДНА (справа) в зависимости от длины волны нейтронов (вертикальная ось, в ангстремах) и угла рассеяния (горизонтальная ось, в градусах). Различные интенсивности и цвета (на вставке справа) указывают на относительное количество нейтронов, измеренных в детекторе. (a), (b) соответствуют данным, измеренным для ДНА и Ф-ДНА, соответственно. Угол падения нейтронов равен 1° .

На Рис. 17 показан результат интегрирования данных, представленных на Рис. 16, во всем диапазоне углов рассеяния (вертикальный размер детектора может быть меньше, чем размер вертикального «пятна» отраженных нейтронов в плоскости детектора; поэтому общая вероятность квазизеркального отражения может быть значительно больше значений, указанных на рисунке). Сравниваются результаты для Ф-ДНА и ДНА для углов падения 1° , 2° и 3° соответственно. Все шесть экспериментальных кривых на Рис. 17 демонстрируют общее поведение. Эффективность отражения мала для коротких длин волн, где доминирует брэгговское рассеяние и возрастает с увеличением длины волны, когда брэгговское рассеяние исчезает. С ростом длины волны нейтронов возрастают углы рассеяния. Вероятность квазизеркального отражения растёт, но растёт и ширина углового распределения отраженных нейтронов, что приводит к падению вероятности регистрации детектором, когда это угловое распределение становится настолько широким, что отраженные нейтроны перестают попадать в детектор.

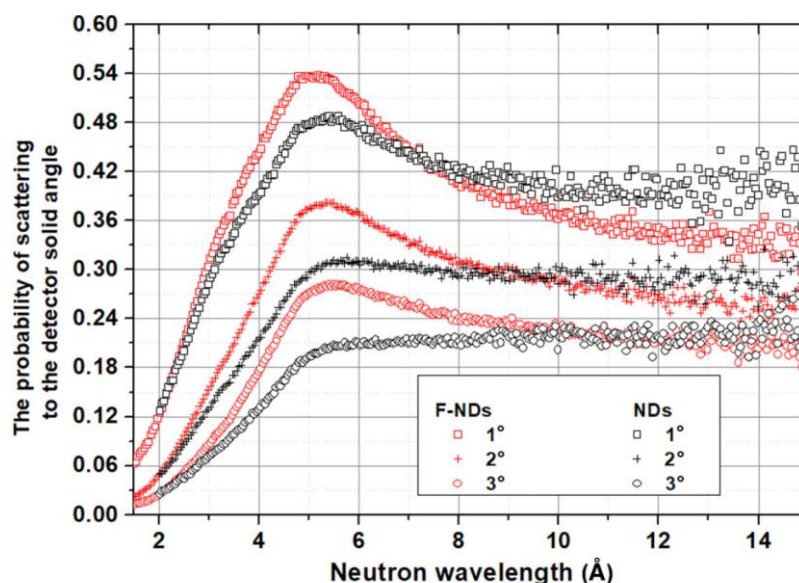


Рис. 17. Вероятность рассеяния нейтронов, измеренная как функция длины волны нейтронов (горизонтальная ось, в ангстремах) от Ф-ДНА (красным цветом) и ДНА (черным цветом) в пределах углового размера детектора D17. Данные проинтегрированы по всему диапазону углов рассеяния, показанных на Рис. 16, и нормированы на общую интенсивность падающего излучения. Угол падения составляет 1° , 2° и 3° соответственно, как указано на вставке.

Если данные, представленные на Рис. 16, проинтегрировать по относительно узким интервалам длин волн, можно получить дифференциальную зависимость интенсивности от угла рассеяния при различных длинах волн (Рис. 18). Эти зависимости имеют схожее

поведение: максимум отражённого пучка находится около зеркального угла, а угловая ширина распределения интенсивности близка к падающему углу. Для больших длин волн углы отражения смещаются в сторону больших значений, и угловой разброс становится шире. Для более коротких длин волн углы смещаются в сторону меньших значений, а угловой разброс становится более узким.

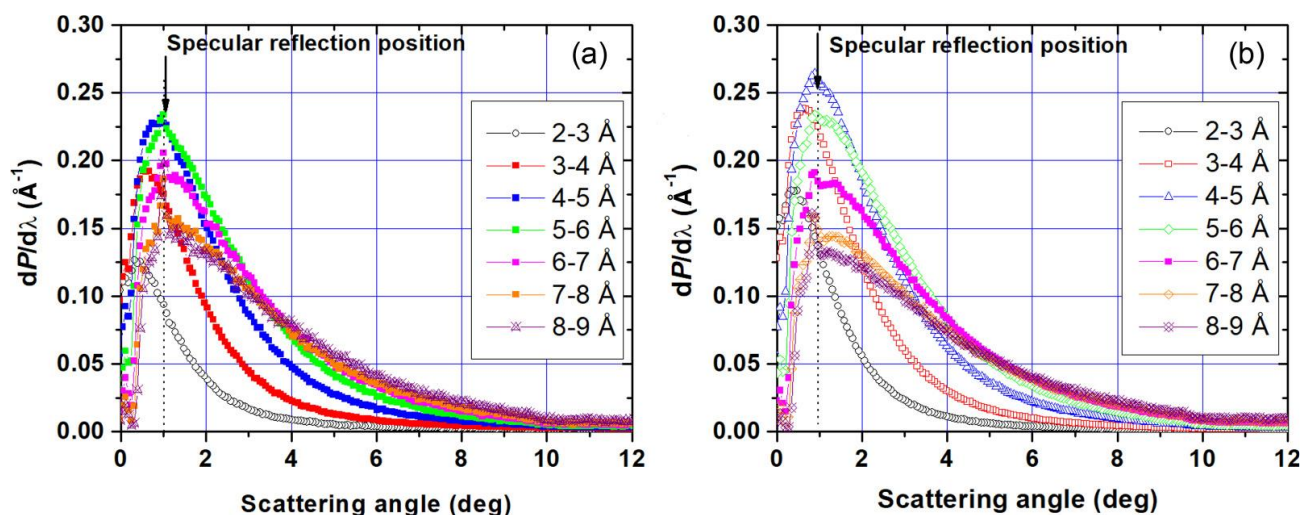


Рис. 18. Дифференциальная вероятность рассеяния нейтронов (вертикальная ось, в \AA^{-1}) в пределах телесного угла детектора D17, измеренная как функция угла рассеяния (горизонтальная ось, в градусах) от ДНА (а) и Ф-ДНА (б). Данные по диапазонам длин волн нейтронов проинтегрированы, как указано на вставке, и нормированы на общую интенсивность падающего нейтронного пучка. Угол падения нейтронов равен 1° .

Модель алмазных шаров хорошо описывает данные угловые зависимости. Вероятность отражения в пределах углового размера детектора составляла $\sim 30\%$, что соответствует 40–50% от полной вероятности (альбедо) квазизеркального отражения для необработанного порошка алмазных наночастиц. Эти значения возрастают до $\sim 40\%$ и 70% в случае фторированного порошка. Тангенциальная составляющая скорости падающих нейтронов была на порядок больше критической скорости для чистого алмаза.

Проведено моделирование системы извлечения ХН в виде узкой горизонтальной щели в предположении, что она ведёт от источника ХН к нейтроноводам, установленным на расстоянии 220 см от источника. Фактор увеличения направленного потока нейтронов на входе в нейтроноводы при длинах волн свыше 12\AA превышает значение 1,5 и может быть повышен путём подбора размера наночастиц.

Шестая глава посвящена описанию исследования, в котором экспериментально показано, как отражатель из ДНА может быть использован при извлечении ОХН из

источника. Схема эксперимента показана на Рис. 19. Подробное описание установки и измерений можно найти в [A13].

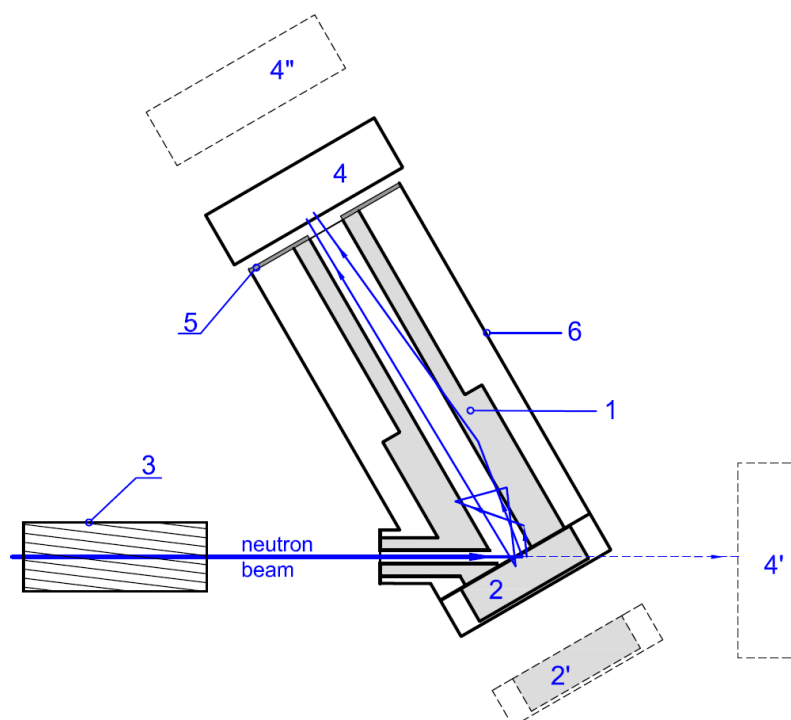


Рис. 19. Схема измерения. (1) – цилиндрическая труба из отражателя; (2) – отражатель в виде диска; (2') – положение диска при измерении потока нейтронов в падающем пучке; (3) – селектор скоростей в виде вращающегося барабана с винтовыми щелями; (4) – позиционно-чувствительный детектор (ПЧД) для измерения потока выходящих нейтронов; (4') – положение ПЧД при измерении потока нейтронов в падающем пучке; (4'') – положение ПЧД при измерении углового распределения выходящих нейтронов; (5) – Cd-диафрагма; (6) – вакуумируемый объём.

Коллимированный пучок ОХН, пройдя через селектор скоростей (3), падает на отражатель из Ф-ДНА в виде диска (2) и отражается от него, имитируя поверхность источника ОХН. К диску приставлена цилиндрическая толстостенная труба-«нейтроновод» (1), стенки которой – порошок Ф-ДНА (для пропускания пучка ОХН внутрь в боковой стенке трубы есть небольшое отверстие). Сравнивается поток ОХН на выходе из трубы, регистрируемый ПЧД детектором (4) (он может устанавливаться на разном расстоянии от выхода (4, 4'') для оценки углового распределения выходящего потока ОХН), с расчётным изотропным потоком от диска, проходящим через выходное отверстие трубы и нормированным на падающий поток ОХН. Падающий поток определяется тем же ПЧД детектором в положении (4') при отодвинутом диске (2) в положение (2'). Отражатели размещены в вакуумном кожухе (6). Внутренняя

поверхность трубы и поверхность диска изготовлены из тонкой (50 мкм) фольги из чистого магния.

Основной результат эксперимента показан на Рис. 20. Он демонстрирует способность отражателя Ф-ДНА усиливать направленный выход ОХН, движущихся под малыми углами к оси трубы. Значения на левой оси Рис. 20 относятся к экспериментальным точкам, которые показывают радиальную зависимость удельной (на единицу площади детектора) вероятности обнаружения ОХН $P(R, v) = J(R)/F_0(v)$, где R – радиальное расстояние в плоскости ПЧД от оси трубы до точки регистрации, v – скорость ОХН, $J(R)$ – плотность потока ОХН, рассчитанная при нахождении ПЧД в положении 4" (см. Рис. 19), а $F_0(v)$ – падающий поток ОХН, измеренный детектором в позиции 4' (см. Рис. 19).

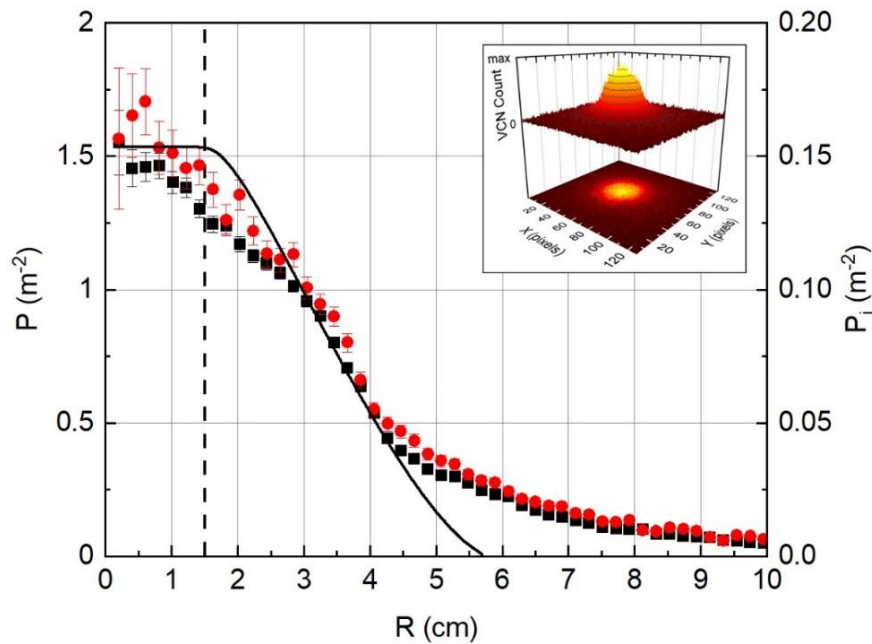


Рис. 20. Зависимость удельной вероятности регистрации ОХН $P(R, v)$ в ПЧД, расположенным на расстоянии 42 см от выходной диафрагмы, от расстояния до оси цилиндрической полости R (левая ось). Круглые красные точки соответствуют скорости нейтронов ~ 57 м/с, квадратные чёрные точки – ~ 75 м/с. Сплошная линия – вероятность $P_i(R, v)$ регистрации, рассчитанная для однородного изотропного источника на дне полости. На вставке представлена карта интенсивности счёта ПЧД детектора по пикселям в измерениях со скоростью ~ 75 м/с.

Для сравнения с экспериментом на Рис. 20 сплошной линией (ей соответствуют значения на правой оси ординат) показана зависимость расчетной вероятности обнаружения ОХН, вылетающих от изотропного однородного источника,

расположенного на дне полости, который моделирует реальный источник ОХН без каких-либо отражателей. Сравнивая экспериментальные и расчётные вероятности, можно увидеть примерно 10-кратный выигрыш в интенсивности из-за наличия отражателя.

Экспериментальные точки (круглые красные и квадратные черные) на Рис. 20 соответствуют вероятностям обнаружения ОХН, измеренным для двух диапазонов скоростей нейтронов со средними значениями ~ 57 м/с и ~ 75 м/с. Погрешности экспериментальных точек на Рис. 20 определяются статистикой. Учтены систематические эффекты, связанные с фоном детектора, потерями на воздухе и окошках вакуумного объёма.

Способность отражателя ДНА усиливать суммарный поток выводимых из резонатора ОХН показана на Рис. 21, где левая ось соответствует вероятности $P_{exit}(v) = F_1(v)/F_0(v)$ для ОХН покинуть отражатель через открытый конец полости под любым углом. Здесь $F_1(v)$ – поток ОХН, выходящий из отражателя и регистрируемый ПЧД в позиции 4 на Рис. 19, а $F_0(v)$ – поток ОХН, попадающий в полость. Оба потока скорректированы на потери в воздухе и фон детектора так же, как и на Рис. 20.

Следует отметить, что существует дополнительная систематическая поправка к $F_1(v)$, в результате которой вероятность обнаружения, представленная на Рис. 21, занижается. Эта поправка связана с зависящим от скорости ОХН поглощением в толстом входном окне ПЧД и различием в угловом распределении потоков нейтронов $F_1(v)$ и $F_0(v)$. Чем меньше скорость нейтрона, тем больше эта поправка. Оценка показывает, что для самых медленных нейтронов она ниже 20%. Точный учет этих потерь затруднён, так как требуется полный расчет транспорта нейтронов. Ошибки экспериментальных точек, показанные на Рис. 21, не учитывают эту погрешность. Аналогичная поправка, связанная с потерями в воздухе, примерно в 10 раз меньше, чем поправка, связанная с окном детектора.

Ошибки экспериментальных точек на Рис. 21, определяются только статистикой.

По правой оси на Рис. 21 показан коэффициент усиления $G = F_1(v)/F_2(v)$, где F_1 – поток ОХН, измеренный в ПЧД в позиции 4, а F_2 – расчетный поток в плоскости ПЧД, расположенного на расстоянии 3,7 см от выхода из трубы, от однородного изотропного источника, распределенного по дну полости. Интенсивность источника принимается равной потоку ОХН, измеренному в позиции 4'.

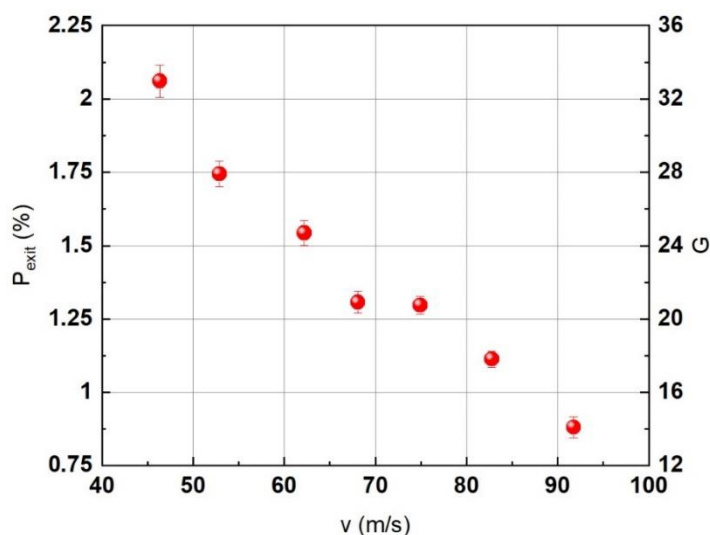


Рис. 21. Левая ось: доля P_{exit} в процентах потока ОХН, выходящих сквозь диафрагму, от потока ОХН, падающего в полость, в зависимости от скорости ОХН. Правая ось: фактор выигрыша G в выходящем потоке по отношению к потоку, который бы проходил сквозь диафрагму от однородного изотропного источника, расположенного на дне полости, с интенсивностью равной интенсивности падающего пучка.

В данном измерении использовалась форма отражателя типичная для источников нейтронов. Она определяется в основном отношением диаметра к высоте трубы. Размер трубы определялся количеством доступного порошка Ф-ДНА. И размер, и форма отражателя не были оптимизированы для конкретного эксперимента. Оптимизация отражателя для конкретной задачи может значительно увеличить коэффициент усиления. Повышение плотности порошка и уменьшение в нем доли примесей также значительно повысит коэффициент усиления. В настоящее время ОХН извлекают из жидких замедлителей холодных нейтронов, помещенных в интенсивный поток тепловых нейтронов. Более эффективный способ производства ОХН – использование специального криогенного замедлителя при более низких температурах, называемого «конвертером». Твердотельный конвертер может увеличить производство ОХН как минимум на порядок при том же потоке падающих тепловых нейтронов. Представленные здесь результаты показывают, что при использовании отражателя из порошка Ф-ДНА можно получить дополнительный порядок в интенсивности ОХН. Действительно, образующиеся в конвертере ОХН распределяются изотропно. Большинство из них были бы потеряны без отражателя, потому что только небольшой телесный угол может быть захвачен нейтроноводом, находящимся на некотором расстоянии от источника. В принципе, телесный угол нейтроновода можно увеличить, поместив его ближе к конвертеру. Однако

это осложняется двумя проблемами: радиационным повреждением нейтроновода и сильным уменьшением теплового потока из-за поглощения в ϵ материале нейтроновода.

В работе предложено увеличить поток нейтронов, захваченных в нейтроновод, путем размещения конвертора внутри отражателя Ф-ДНА, длина которого должна быть достаточной для достижения входа в нейтроновод. Такой отражатель прозрачен для тепловых и холодных нейтронов, поэтому не повлияет на нейтронный поток, облучающий конвертер. Предварительные испытания показали высокую радиационную стойкость порошка Ф-ДНА. Для эффективного использования отражателя Ф-ДНА с реальным источником нейтронов (конвертером) необходимо, чтобы материал конвертора был прозрачен для ОХН (вероятность потерь нейтронов в конвертере должна быть меньше вероятности их выхода из полости или, по крайней мере, сравнима с ней). Таким конвертером может быть твердый дейтерий, помещенный в поток ХН. Порошок Ф-ДНА практически прозрачен для ХН ниже порога Брэгга, и отражатель никак не повлияет на их плотность потока за исключением фактора, связанного с удалением конвертера от замедлителя. Поэтому, очевидно, выгодно заглублять конвертер с отражателем внутрь замедлителя. Дополнительным преимуществом наличия отражателя между конвертером и замедлителем является то, что он позволяет уменьшить толщину конвертора. Такое уменьшение позволяет снизить тепловую нагрузку на конвертер и более эффективно использовать поток ХН, если он достаточно быстро падает по мере удаления от замедлителя из-за расположения конвертора в области с более высокой плотностью потока ХН.

Значение фактора выигрыша на Рис. 20 менее единицы обусловлено образованием теней на больших углах от боковых стенок отражателя по сравнению со случаем изотропного источника, где предполагается, что отражатель отсутствует.

Полученные результаты можно использовать для проверки используемой математической модели и корректности описания транспорта нейтронов путём моделирования полной геометрии эксперимента.

Использование такого отражателя в источниках ОХН существенно увеличит поток ОХН в экспериментальных установках и позволит расширить применение ОХН как в фундаментальных исследованиях (поиск электрического дипольного момента нейтрона, осцилляций нейтрон-антинейтрон, новых типов взаимодействий, измерение времени жизни нейтрона), так и в нейтронном рассеянии (спин-эхо, рефлектометрия, томография).

Основные результаты работы

1. Из экспериментального наблюдения чрезвычайно интенсивного рассеяния ОХН на наночастицах алмазного порошка сделан вывод, что порошки с наночастицами могут быть эффективными диффузными отражателями ОХН с энергиями до 10^{-4} эВ, превышающие как по вероятности отражения, так и по энергетическому диапазону отражаемых нейтронов значения для наилучших доступных в настоящее время суперзеркал. Показано, что алмазные наночастицы являются наилучшим материалом для создания такого отражателя в силу сочетания своих физических свойств (высокая объёмная концентрация ядер в алмазной фазе, большое значение для когерентной длины рассеяния и малое сечение захвата атомов углерода). Коммерчески доступные ДНА имеют размеры частиц близкие к оптимальным.

2. Впервые наблюдалось накопление ОХН со скоростями в диапазоне 40-160 м/с (энергия до 10^{-4} эВ) в ловушке со стенками, состоящими из порошка алмазных наночастиц.

3. Показано, что доля атомов водорода в порошке наноалмазов может быть уменьшена путем его термической обработки или длительной откачки до соотношения $C_{12.4}H$. Это значение соответствует массовой доле водорода, равной 0,7%. Начальное соотношение атомов углерода и водорода в неочищенном порошке ДНА составляет $C_{7.4}H$. Измерения спектров возбуждения в порошке показывают, что удаленный водород был в форме воды, адсорбированной на поверхности. Остаточный водород химически связан с углеродом. Полное поперечное сечение рассеяния нейтронов на химически связанном водороде составляет 108 ± 2 барн; оно уменьшается не более чем на 3% при охлаждении порошка до температуры жидкого азота.

4. Разработана модель алмазных наночастиц с дискретным распределением по размерам для анализа данных малоуглового рассеяния нейтронов на алмазных нанопорошках. Она проста в использовании и может быть применена в качестве универсального инструмента для описания транспорта ОХН в любом порошке наноалмаза после определения параметров модели из результатов малоуглового рассеяния для данного порошка. Таким образом данная модель является инструментом сравнения различных образцов наноалмазов.

5. Было изучено влияние фторирования ДНА на их структуру и кластеризацию. Обнаружено, что фторирование не влияет существенно ни на малоугловое рассеяние нейтронов на отдельных ДНА, ни на размеры и структуру кластеров в диапазоне радиусов 0,6-200 нм. Из полученных результатов сделан вывод, что увеличение отражательной способности нейтронов будет обусловлено в первую очередь значительным снижением потерь нейтронов в порошке, вызванным заменой атомов водорода на атомы фтора.

6. Показано, что эффект кластеризации ДНА является существенным при анализе рассеяния нейтронов и распространения нейтронов в порошках ДНА. Уменьшение кластеризации приводит к росту эффективности отражения медленных нейтронов порошками ДНА за счёт увеличения насыпной плотности.

7. Исследовано влияние размеров частиц на эффективность отражателей нейтронов из порошков ДНА. Модельным расчётом, базирующемся на экспериментальных данных, показано, что, если типичные ДНА с размером $\sim 4,3$ нм эффективны для отражения ОХН с характерной скоростью ~ 50 м/с, другие средние размеры ДНА будут более эффективны для отражения ОХН с другими скоростями. Уменьшение среднего размера (возможный фактор уменьшения примерно равен трём) позволяет более эффективно отражать более быстрые нейтроны. Увеличение среднего размера (возможный фактор увеличения тоже примерно равен трём) позволяет увеличить время хранения более медленных ОХН. Уменьшение размера частиц, на примере приготовленных образцов, будет приводить к увеличению альbedo нейтронов в широком диапазоне скоростей выше ~ 60 м/с. Это увеличение альbedo приведёт к увеличению плотности более быстрых ОХН в полости из отражателя на $\sim 25\%$, а также к увеличению верхней границы скоростей эффективно отражаемых ОХН.

8. Предсказано и продемонстрировано явление квазизеркального отражения ХН от плоской поверхности нанодисперсной среды при малых скользящих углах. Квазизеркальным названо отражение в относительно узком диапазоне углов, сконцентрированных около угла, соответствующему зеркальному отражению. Явление обусловлено многократным рассеянием нейтронов на малые углы на неоднородностях нейтронно-оптического потенциала нанометрового масштаба. В отличие от стандартного подкритического отражения нейтронов от оптического потенциала однородной среды, квазизеркальное отражение может наблюдаться также при углах, значительно превышающих критические углы. Показано, что наиболее вероятный угол отражения и

полуширина разброса углов отражения приблизительно равны углу падения в широком диапазоне скользящих углов падения. Диапазон длин волн эффективного квазизеркального отражения ограничен снизу примерно 4 \AA из-за появления брэгговского рассеяния при меньших длинах волн. При больших длинах волн в явлении теряется «зеркальность». Угловое распределение отраженного пучка становится слишком широким.

9. Экспериментально изучено влияние обработки фтором порошка ДНА, использованной для удаления водорода, на квазизеркальное отражение холодных нейтронов. Полная вероятность отражения достигает $\sim 70\%$ для нейтронов с длинами волн $10\text{--}15 \text{ \AA}$ и становится равной $45\%\text{--}65\%$ на длинах волн $4\text{--}6 \text{ \AA}$, что соответствует максимальной интенсивности в типичных пучках холодных нейтронов. Повышение эффективности отражения нейтронов обусловлено в первую очередь значительным снижением потерь нейтронов в порошке, вызванным заменой водорода на фтор.

10. Экспериментально продемонстрирована возможность улучшенного направленного извлечения пучка ОХН с использованием отражателя, изготовленного из Ф-ДНА. По отношению к теоретическому потоку, рассчитанному от изотропного плоского источника, выигрыш в плотности потока ОХН вдоль оси пучка составляет ~ 10 для скоростей нейтронов $\sim 57 \text{ м/с}$ и $\sim 75 \text{ м/с}$.

Список публикаций автора по теме диссертации

- A1. Nesvizhevsky V.V., Lychagin E.V., Musychka A.Yu., et al., *The reflection of very cold neutrons from diamond powder nanoparticles.*, NIM A, **595**(3), p. 631-636 (2008). <https://doi.org/10.1016/j.nima.2008.07.149>
- A2. Lychagin E.V., Muzychka A.Yu., Nekhaev et al., *Storage of very cold neutrons in a trap with nano-structured walls.*, Physics Letters B, **679**(3), p. 186–190 (2009). <https://doi.org/10.1016/j.physletb.2009.07.030>
- A3. Lychagin E.V., Muzychka A.Yu., Nesvizhevsky V.V., et al., *Coherent scattering of slow neutrons at nanoparticles in particle physics experiments.*, NIM A, **611**, p. 302–305 (2009). <https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.07.086>
- A4. Nesvizhevsky V., Cubitt R., Lychagin E. et al., *Application of Diamond Nanoparticles in Low-Energy Neutron Physics.*, Materials, **3**(3) p. 1768-1781 (2010). <https://doi.org/10.3390/ma3031768>

- A5. Cubitt R., Lychagin E.V., Muzychka A.Yu. et al., *Quasi-specular reflection of cold neutrons from nano-dispersed media at above-critical angles.*, NIM A, **622**, p. 182-185 (2010). <https://doi.org/10.1016/j.nima.2010.07.049>
- A6. Krylov R., Lychagin E. V., Muzychka A. Yu. et al., *Study of Bound Hydrogen in Powders of Diamond Nanoparticles.*, Crystallography Reports, **Vol. 56**, No. 7, p. 1186–1191 (2011). <https://doi.org/10.1134/S1063774511070169>
- A7. Lychagin E.V., Muzychka A.Yu., Nesvizhevsky V.V. *Nano-Structured Reflectors for Slow Neutrons.*, in [New Developments in Low-Energy Physics Research](#) **Editors:** Tao Zoeng and Meng Ngai NOVA Publishers 2013
- A8. Nesvizhevsky V. V., Dubois M., Gutfreund Ph., *Effect of nanodiamond fluorination on the efficiency of quasispecular reflection of cold neutrons.*, Phys. Rev. A, **97**, 023629 (2018). <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.023629>
- A9. Bosak A., Dideikin A., Dubois M. et al., *Fluorination of Diamond Nanoparticles in Slow Neutron Reflectors Does Not Destroy Their Crystalline Cores and Clustering While Decreasing Neutron Losses.*, Materials, **13**(15), p. 3337 (2020). <https://doi.org/10.3390/ma13153337>
- A10. Aleksenskii A., Bleuel M., Bosak A. et al., *Clustering of Diamond Nanoparticles, Fluorination and Efficiency of Slow Neutron Reflectors.*, Nanomaterials, **11**(8), p. 1945 (2021). <https://doi.org/10.3390/nano11081945>
- A11. Aleksenskii A., Bleuel M., Bosak A. et al., *Effect of Particle Sizes on the Efficiency of Fluorinated Nanodiamond Neutron Reflectors.*, Nanomaterials, **11**(11), p. 3067 (2021). <https://doi.org/10.3390/nano11113067>
- A12. C. Hramco, K. Turlybekuly, S.B. Borzakov, et al., *Experimental setup for elemental analysis using prompt gamma rays at research reactor IBR-2.*, Nuclear Engineering and Technology, **54**(8), p. 2999-3005 (2022). <https://doi.org/10.1016/j.net.2022.02.022>
- A13. Chernyavsky S.M., Dubois M., Korobkina E. et al., *Enhanced directional extraction of very cold neutrons using a diamond nanoparticle powder reflector.*, Review of Scientific Instruments, **93**, 123302 (2022) <https://doi.org/10.1063/5.0124833>

Список цитируемой литературы

1. Зельдович Я.Б., *Хранение холодных нейтронов*. ЖЭТФ, 1959, Т. **36** (6), С. 1952 (1959)
2. Pendlebury J. M., *Fundamental physics with ultracold neutrons*. Annu. Rev. Nucl. Part. Sci., **V. 43**, p. 687-727 (1993). <https://doi.org/10.1146/annurev.ns.43.120193.003351>
3. Egelstaff P. A. and Pease R. S., *The design of cold neutron filters*. (1954) J. Sci. Instrum., **V.31**, p. 207 (1954). <https://dx.doi.org/10.1088/0950-7671/31/6/305>
4. Fermi E., *A course in neutron physics in Collected papers*. The University of Chicago Press, Chicago (1965).
5. Maier-Leibnitz H., *The use of neutron optical devices on beam-hole experiments on beam-hole experiments*. Reactor Sci. Technol., **V. 17**, p. 217 (1963). [https://doi.org/10.1016/0368-3230\(63\)90022-3](https://doi.org/10.1016/0368-3230(63)90022-3)
6. Mezei F., Novel polarized neutron devices: supermirror and spin component amplifier., Commun. Phys. 1, 81 (1976). https://www.ill.eu/fileadmin/user_upload/ILL/4_Neutrons_for_society/neutron-technology/pdfs/optics/comm-on-phys-sm-1.pdf
7. Maruyama R., Yamazaki D., Ebisawa T. et al., Development of neutron supermirrors with large critical angle. Thin Solid Films 515 5704 (2007). <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2006.12.022>
8. E. Fermi, *Sul moto dei neutroni nelle sostanze idrogenate* (In Italian), Ric. Sci. 7, p. 13-52 (1936).
9. Давыдов А. С. *Квантовая механика*. М.: Наука, 704 с. (1973)
10. Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. *Квантовая механика (нерелятивистская теория)*. Издание 4-е. М.: Наука, 768 с (1989).
11. Nesvizhevsky V.V., Pignol G., Protasov K.V., *Nanoparticles as a Possible Moderator for An Ultracold Neutron Source*. Int. J. Nanosci. **6** (6), p. 485 (2007). <https://doi.org/10.1142/S0219581X07005073>
12. Гермогенова Т. А., Золотухин В.Г., Климанов В.А. и др., *Альbedo нейтронов*. Атомиздат, Москва, (1973).
13. Игнатович В. К., Шабалин Е. П. *Алгебраический метод расчета альbedo нейтронов*. Ядерная физика, Т. **70**, №2, с. 288–296 (2007).

14. В.А. Артемьев, *Оценка отражения нейтронов от нанодисперсных материалов*. Атомная энергия **Т. 101**, с. 445–448 (2006). <https://j-atomicenergy.ru/index.php/ae/article/view/1948/1928> (<https://doi.org/10.1007/s10512-006-0189-y>)
15. De Carli P.S., Jamieson J.C., *Formation of Diamond by Explosive Shock*. Science **V.133** (3457), p. 1821-1822 (1961). <https://www.science.org/doi/10.1126/science.133.3467.1821>
16. Mochalin V.N., Shednerova O., Ho D., Gogotsi Y. *The properties and applications of nanodiamonds*./ Nature Nanotechnology, **Vol. 7**, p. 11-23 (2012). <https://doi.org/10.1038/nnano.2011.209>
17. Vul' A., Shenderova O. *Detonation Nanodiamonds: Science and Applications*; Pan Stanford Publishing: Singapore, (2014).
18. Williams, O. *Nanodiamond.*, RSC Publishing: Cambridge, UK, (2014).
19. Baidakova M., Vul' A. *New prospects and frontiers of nanodiamond clusters*. J. Phys. D. Appl. Phys., **Vol. 40**, №20, p. 6300-6311 (2007). <https://dx.doi.org/10.1088/0022-3727/40/20/S14>.
20. Aleksenskii A.E., Baidakova M.V., Vul' A.Y. et al., *The structure of diamond nanoclusters*. Physics of Solid State **V. 41**, 668-671 (1999). <https://doi.org/10.1134/1.1130846>
21. Barnard A.S., Sternberg M. *Crystallinity and surface electrostatics of diamond nanocrystals*. J. Mater. Chem., 17, 4811–4819 (2007). <https://doi.org/10.1039/B710189A>.
22. Krueger A. *Current issues and challenges in surface chemistry of nanodiamonds*. In Nanodiamonds: Advanced Material Analysis; Arnault, J.-C., Ed.; Elsevier: Amsterdam, The Netherlands, pp. 184–242, Chapter 8 (2017).
23. The Yellow Book 2005. Available online: <http://rencurel.essworkshop.org/documents/YellowBookCDrom/index.htm> (доступно 4 января 2023).
24. Турчин В.Ф. *Медленные нейтроны.*, М., Госатомиздат, 1963.
25. <http://www.ultradiamondtech.com> (доступно 2005)
26. Vereschagin A.L., Sakovich G.V., Komarov V.F., Petrov E.A., *Properties of Ultrafine Diamond Clusters from Detonation Synthesis*. Diamond Relat. Mater. **3** (1), p. 160-162 (1993). [https://doi.org/10.1016/0925-9635\(94\)90050-7](https://doi.org/10.1016/0925-9635(94)90050-7)

27. Fermi E., *A course in neutron physics*, in: Collected Papers, The University of Chicago Press, Chicago (1965).
28. <http://www.ill.eu/instruments-support/instruments-groups/instruments/superadam>
(доступна 4 января 2023)
29. Granada J.R., Davidowski J., Mayer R.E. et al. *Thermal neutron cross section and transport properties of polyethylene*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, **V. 261**(3), p. 573-578 (1987). [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(87\)90370-6](https://doi.org/10.1016/0168-9002(87)90370-6)
30. https://rencurel.essworkshop.org/documents/YellowBookCDrom/data/10_1_1.pdf
(доступна 4 февраля 2023)
31. Kolesnikov A.I., Antonov V.E., Bashkin I.O. et al. *Neutron spectroscopy of C₆₀H_x quenched under hydrogen pressure*. Physica B, **V. 234**, P. 10 (1997). [https://doi.org/10.1016/S0921-4526\(96\)00860-5](https://doi.org/10.1016/S0921-4526(96)00860-5)
32. Kolesnikov A.I., Antonov V.E., Bashkin I.O. et al., *Neutron spectroscopy of fullerite hydrogenated under high pressure; evidence for interstitial molecular hydrogen*. J. Phys.: Condens. Matter., **V. 9**(13), p. 2831 (1997). <https://dx.doi.org/10.1088/0953-8984/9/13/022>
33. Bashkin I.O., Kolesnikov A.I., Antonov V.E. et al. *Vibrational spectra of C₆₀ hydrofullerite prepared under high hydrogen pressure*. Mol. Mater., **V. 10**, P. 265-270 (1998).
34. Kolesnikov A.I., Antonov V.E., Bashkin I.O. et al., *Neutron spectroscopy of fullerite hydrogenated under high pressures*. Physica B., **V. 263**, P. 436-438 (1999). [https://doi.org/10.1016/S0921-4526\(98\)01403-3](https://doi.org/10.1016/S0921-4526(98)01403-3)
35. Nesvizhevsky V.V., Koester U., Dubois M. et al., *Fluorinated nanodiamonds as unique neutron reflector*. Carbon, **130**, p. 799–805 (2018). <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2018.01.086>
36. Varley F. Sears *Neutron scattering lengths and cross sections*. Neutron News, **Vol. 3**, No. 3, pp. 29-37 (1992). www.doi.org/10.1080/10448639208218770
37. Remizovich V. S., *Theoretical description of elastic reflection of particles (photons) incident at grazing angles without the use of the diffusion approximation.*, JETP **60**(2), p. 290-299; ЖЭТФ, **Т. 87**, №2, с. 506 (1984). http://jetp.ras.ru/cgi-bin/dn/e_060_02_0290.pdf
38. Cubitt R., Fragneto G., *D17: The new reflectometer at the ILL.*, Appl. Phys. A., **74**, S329 (2002). <https://doi.org/10.1007/s003390201611>