

## К 60-ЛЕТИЮ ОБЪЕДИНЁННОГО ИНСТИТУТА ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ (ОИЯИ)

## Дифракция нейтронов на импульсных источниках

В.Л. Аксёнов, А.М. Балагуров

*Рассмотрены современные возможности дифракции нейтронов по времени пролёта и основные научные задачи, решаемые этим методом. Метод быстро развивался в последние два десятилетия. В основном это связано с появлением импульсных источников третьего поколения с мегаваттным уровнем средней по времени мощности, совершенствованием нейтроно-оптических устройств и детекторных систем. Затронуты некоторые исторические аспекты становления дифракции нейтронов по времени пролёта и отражена роль в развитии этого метода Ф.Л. Шапиро, 100-летие со дня рождения которого отмечалось в 2015 г. Специальный раздел посвящён современному состоянию дел с источниками нейтронов для исследований на выведенных пучках.*

**Ключевые слова:** дифракция нейтронов, современные источники нейтронов, импульсные источники нейтронов, метод времени пролёта, структура кристаллов

PACS numbers: 29.25.Dz, 61.05.fm

DOI: 10.3367/UFNr.0186.201603e.0293

## Содержание

1. Введение (293).
2. Общая ситуация с дифракцией нейтронов на кристаллах (294).
3. Два типа нейтроновых дифрактометров:  $\lambda_0$ -дифрактометры и времяпролётные дифрактометры (295).
4. Некоторые исторические аспекты появления времяпролётных дифрактометров (296).
5. Работы по дифракции нейтронов на первом импульсном реакторе в Дубне (298).
6. Специализация времяпролётных дифрактометров (300).
7. Научные задачи, решаемые на современных времяпролётных дифрактометрах (303).
  - 7.1. Исследования монокристаллов. 7.2. Структурные исследования поликристаллов. 7.3. Исследования переходных процессов (эксперименты в реальном времени). 7.4. Исследования атомной и магнитной структуры при высоких давлениях. 7.5. Исследования

ния локального структурного беспорядка. 7.6. Исследования микроструктуры кристаллических материалов.

8. Современные источники нейтронов (309).
    - 8.1. Источники с непрерывным потоком. 8.2. Импульсные источники. 8.3. Европейская стратегия развития. 8.4. Источники нейтронов в России.
  9. Заключение (318).
- Список литературы (319).

*Посвящается памяти Ф.Л. Шапиро*

## 1. Введение

Около 50 лет тому назад, в 1963–1964 гг., в Лаборатории нейтронной физики (ЛНФ) Объединённого института ядерных исследований (ОИЯИ) в Дубне на импульсном реакторе ИБР-1 были проведены первые полноценные дифракционные эксперименты с использованием метода времени пролёта, что послужило катализатором последующего бурного развития исследований в этом направлении. Вскоре после проведения экспериментов в Дубне времяпролётный метод был применён сразу в нескольких нейтронных центрах мира на электронных ускорителях с мишенями, и стало ясно, что дифрактометры по времени пролёта на импульсных источниках нейтронов вполне конкурентоспособны с обычными установками на реакторах с непрерывным потоком нейтронов (стационарных реакторах). Основным достоинством времяпролётных дифрактометров явилась возможность использования почти всего сплошного ("белого") спектра нейтронов от источника, тогда как на обычных дифрактометрах с монохроматическим пучком доля "полезных" нейтронов не превышала 1%. В результате даже на сравнительно маломощных первых импульсных источниках (их средняя по времени мощность была на уровне несколь-

**В.Л. Аксёнов.** Национальный исследовательский центр "Курчатовский институт", Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова, Орлова роща, 188300 Гатчина, Ленинградская обл., Российская Федерация  
Тел. (81371) 46-029. Факс (81371) 36-025  
E-mail: dir@pnpi.spb.ru

Объединённый институт ядерных исследований, ул. Жолио-Кюри 6, 141980 Дубна, Московская обл., Российская Федерация  
Тел. (49621) 65-796  
E-mail: aksenov@nf.jinr.ru

**А.М. Балагуров.** Объединённый институт ядерных исследований, ул. Жолио-Кюри 6, 141980 Дубна, Московская обл., Российская Федерация  
Тел. (49621) 66-844. Факс (49621) 65-484  
E-mail: bala@nf.jinr.ru

Статья поступила 31 августа 2015 г.



**Рис. 1.** Фёдор Львович Шапиро (1915–1973) в своём рабочем кабинете в ЛНФ ОИЯИ. В 1959–1973 годах Ф.Л. Шапиро был заместителем директора ЛНФ ОИЯИ.

ких кВт) в Дубне, Харуэлле (Великобритания) и Тохоку (Япония) удавалось получать весьма интересные результаты.

Уже в 1970-х годах началась работа по строительству нового поколения импульсных источников. Возникло два основных направления. Одно из них было основано на протонных ускорителях с мишенями из тяжёлых металлов, получивших в англоязычной литературе название Spallation Neutron Source (SNS), или протонных источников нейтронов, с мощностью вплоть до 200 кВт. Такие источники были введены в строй в США, Великобритании и Японии. В конце XX в. появились проекты импульсных источников очередного, уже третьего, поколения со средней тепловой мощностью, превышающей 1 МВт. Первые два из них сравнительно недавно начали работать в США и Японии, и исследования на них занимают всё большую долю в общем потоке нейтронографических экспериментов. Другое, совершенно оригинальное, направление было основано на успешной работе первого в мире импульсного (пульсирующего) реактора ИБР (Импульсный быстрый реактор) в Дубне [1]. Реакторы этой серии за прошедшие десятилетия с начала работы в 1960 г. первого из них прошли большой путь совершенствования и сыграли заметную роль в развитии нейтронных исследований. Достаточно сказать, что концепция нового сооружаемого сейчас в Швеции Европейского протонного источника нейтронов (European Spallation Source — ESS) формировалась под влиянием работы реактора ИБР-2 как источника с длинным импульсом.

Нейтронные структурные исследования на импульсных источниках по состоянию на середину 1990-х годов были рассмотрены нами 20 лет тому назад [2]. За прошедшее с тех пор время ситуация существенно изменилась. Во-первых, изменились состав и качество источников нейтронов. Во-вторых, общий технический прогресс и новые идеи в конструировании дифрактометров, формировании нейтронных пучков и создании детекторных систем позволили достичь таких возможностей в нейтронной дифрактометрии, которые два десятилетия назад казались немыслимыми. Поэтому написание нового обзора стало необходимостью.

Есть ещё одно обстоятельство, заставившее нас вернуться к этой теме: в печати регулярно появляются не вполне корректные заметки и высказывания о том, как происходило становление дифракции на импульсных источниках нейтронов с использованием времяпролётного метода. Как правило, в них излагается мнение, когда-то сформировавшееся на основании появившихся в начале 1960-х годов одной-двух публикаций. При этом игнорируется как довольно долгая предыстория, так и относительная важность тех или иных событий. Мы постарались более аккуратно проанализировать ситуацию, предшествующую первым и последующим дифракционным экспериментам.

И наконец, в 2015 г. исполнилось 100 лет со дня рождения Фёдора Львовича Шапиро, физика, учителя, человека, повлиявшего на судьбы большого числа людей, основателя научной школы нейтронной физики на импульсных источниках в Дубне. С 1959 г. и до своей кончины в 1973 г. Ф.Л. Шапиро был заместителем И.М. Франка в ЛНФ ОИЯИ и существенно влиял на формирование научной тематики, в том числе и в обсуждаемой здесь области. Этот обзор мы посвящаем памяти Ф.Л. Шапиро (рис. 1).

В настоящем обзоре рассмотрены основные научные задачи, решаемые на современных времяпролётных дифрактометрах. Для полноты изложения специальный раздел посвящён современному состоянию дел с источниками нейтронов для исследований на выведенных пучках.

## 2. Общая ситуация с дифракцией нейтронов на кристаллах

Ко времени открытия нейтрона Дж. Чедвиком в 1932 г. рентгеновский структурный анализ являлся уже вполне сформировавшимся экспериментальным методом, с помощью которого стал возможным анализ структуры вещества на атомном уровне. К тому времени благодаря квантовой механике волновые свойства частиц уже не были загадкой, в частности, в 1927 г. были проведены успешные эксперименты по дифракции электронов. Однако возможность дифракции нейтронов была предположена и осуществлена только спустя четыре года после их открытия (см. оригинальные статьи в юбилейном сборнике [3]). Первые реальные нейтронные дифракционные эксперименты были проведены ещё примерно спустя 10 лет [4], после появления ядерных реакторов, т.е. отставание от рентгеновских работ составило более 30 лет. Тем не менее, благодаря тому что общие принципы дифракции рентгеновских лучей и нейтронов на кристаллах практически одинаковы, удалось быстро адаптировать весь накопленный в рентгеновском струк-

турном анализе опыт. Уже в конце 1940-х годов К. Шаллом были получены выдающиеся результаты, которые в 1994 г. были отмечены Нобелевской премией. В частности, впервые были наблюдаемы [5] изотопические эффекты в дифракции нейтронов и была подтверждена [6] гипотеза о существовании антиферромагнитного упорядочения в кристаллах. Эти успехи и строительство в 1960-х годах мощных ядерных реакторов помогли окончательно становлению нейтронографии как одного из наиболее эффективных методов изучения атомной и магнитной структуры кристаллов.

Эффективность структурной нейтронографии связана прежде всего с радикальными отличиями взаимодействия с веществом нейтронов, с одной стороны, и рентгеновских лучей и синхротронного излучения, с другой. Нейтрон, проникая в среду, испытывает взаимодействия нескольких типов, но основными являются сильное (ядерное) и электромагнитное. Первое из них проявляется, когда нейтрон взаимодействует с ядром атома, магнитное дипольное взаимодействие возникает между магнитным моментом нейтрона и магнитным моментом атома, складывающимся из спиновых и орбитальных моментов электронов. Рассеяние нейтронов низких энергий почти на всех ядрах можно характеризовать некоторыми константами, называемыми длинами рассеяния, с важной специфической особенностью — они нерегулярным образом изменяются от элемента к элементу и от изотопа к изотопу. В результате длины рассеяния элементов, находящихся в разных местах таблицы Менделеева, могут быть сравнимыми между собой и, наоборот, соседние элементы или изотопы могут иметь заметно различающиеся длины рассеяния. Рентгеновские лучи не различают изотопы, а рассеяние на элементах связано только с электронной плотностью. Эти различия определяют те области структурных исследований конденсированных сред, в которых использование дифракции нейтронов наиболее эффективно. Традиционно к ним относят структурный анализ соединений, состоящих из лёгких и тяжёлых атомов (гидриды, оксиды), соединений с близкими по номеру элементами (сплавы, интерметаллиды), биологических соединений с применением изотопического контрастирования (в основном с заменой водорода дейтерием) отдельных фрагментов структуры, а также анализ магнитной структуры кристаллов, т.е. определение величины и направления атомных магнитных моментов. Во всех перечисленных случаях рентгеновские лучи практически "не видят" необходимых деталей.

Ещё одной важной специфической особенностью тепловых нейтронов является то, что их линейные коэффициенты поглощения в большинстве веществ в несколько тысяч раз меньше, чем для рентгеновских лучей. Соответственно, высокая проникающая способность нейтронов позволяет использовать сравнительно сложные конструкции для реализации определённых внешних воздействий на вещество, например, в экспериментах с модельными электрохимическими ячейками при изучении процессов заряда – разряда.

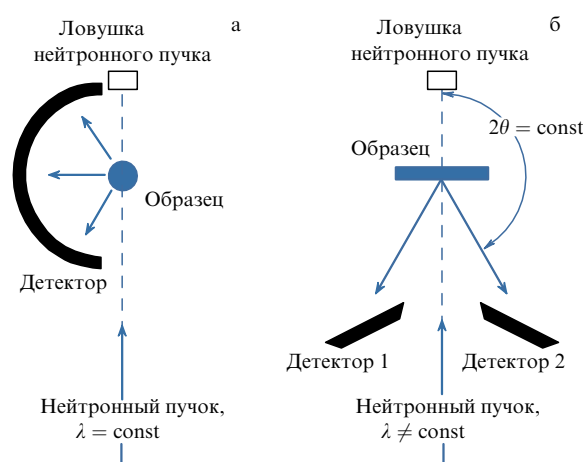
В настоящее время в мире действуют около 30 научных центров, базирующихся на современных исследовательских источниках нейтронов, которые оснащены разнообразными нейтронными спектрометрами. В состав последних в обязательном порядке входит несколько специализированных дифрактометров. Как правило, ра-

бота в нейтронных центрах ведётся в рамках программы пользователей, что предполагает подачу заявок на эксперимент, их экспертную оценку и выделение необходимого времени для заявок, получивших высокие баллы. Анализ состояния и перспективы развития источников нейтронов в мире представлены в разделе 8.

### 3. Два типа нейтронных дифрактометров: $\lambda_0$ -дифрактометры и времяпролётные дифрактометры

Любой исследовательский источник, стационарный или импульсный, производит нейтронный поток с распределением нейтронов по энергии, близким к максвелловскому. В дифракционном эксперименте с кристаллом положения пиков в обратном пространстве фиксированы — они определяются только кристаллической решёткой, и для их регистрации требуется правильно подобрать длину волны  $\lambda$  и угол рассеяния  $2\theta$ , а именно таким образом, чтобы выполнялось условие Брэгга – Вульфа  $2d\sin\theta = \lambda$ , где  $d$  — межплоскостное расстояние. Соответственно, возможны два типа сканирования обратного пространства кристалла: по углу рассеяния при фиксированной длине волны или по длине волны при фиксированном угле рассеяния, что приводит к возможности реализации нейтронных дифрактометров двух типов (рис. 2).

На стационарных реакторах традиционно используются дифрактометры с монохроматическим пучком нейтронов, которые фактически являются увеличенной по масштабам копией рентгеновских установок, что непосредственно связано с большим размером активной зоны реактора. Далее будем их обозначать как  $\lambda_0$ -дифрактометры. На импульсных источниках естественным является использование всего максвелловского ("белого") спектра нейтронов и времяпролётного метода для определения их энергии (длины волны). Сравнительно небольшая скорость тепловых нейтронов позво-



**Рис. 2.** (а) Схема  $\lambda_0$ -дифрактометра. Используется монохроматический пучок нейтронов, рассеянные нейтроны регистрируются одним большим позиционно-чувствительным детектором с развёрткой по углу рассеяния. Предпочтительной является цилиндрическая геометрия образца. (б) Схема времяпролётного дифрактометра. Используются импульсный пучок нейтронов со сплошным спектром и несколько отдельных детекторов, расположенных при фиксированных углах рассеяния. Развёртка дифракционного спектра ведётся по длине волны нейтрона, геометрия образца может быть любой.

ляет легко организовать этот процесс. Соответственно, для установок на импульсных источниках в англоязычной литературе привилось название TOF-diffractometers (TOF — от Time-of-Flight), в русскоязычной литературе их обычно называют времяпролётными дифрактометрами. Формальным аналогом времяпролётных дифрактометров в случае рентгеновского или синхротронного излучений являются так называемые энергодисперсионные спектрометры, в которых используется сплошной спектр излучения, а анализ по энергии производится чувствительным к ней детектором.

Появление времяпролётных дифрактометров стало заметным событием в развитии нейтронной дифрактометрии. Помимо уже отмеченного существенно более эффективного, чем на стационарных реакторах, использования производимых источником нейтронов, им присущи несколько важных методических возможностей. Во-первых, следует отметить возможность работы при фиксированной геометрии эксперимента. В частности, это позволило сразу же заметно увеличить диапазон достижимых давлений в экспериментах с высокими внешними давлениями [7]. Во-вторых, TOF-метод позволяет легко реализовать параллельное трёхмерное (3D) сканирование обратного пространства кристалла, используя двухкоординатный позиционно-чувствительный детектор (2D ПЧД), третьей координатой при этом выступает время пролёта нейтрона. Важно, что сканирование может быть исключительно подробным (фактически непрерывным), что делает TOF-дифрактометры незаменимыми при анализе диффузного рассеяния в случае дефектных структур и несоизмеримо модулированных атомных или магнитных структур. Наконец, импульсный характер облучения образца нейтронами от источника даёт возможность и внешнее воздействие на образец сделать импульсным. В этом случае воздействие можно многократно увеличить, что было продемонстрировано ещё в конце 1960-х годов в экспериментах с импульсными магнитными полями [8].

Подчеркнём, что при сравнении методов необходимо учитывать много факторов. У каждого из методов есть свои преимущества и недостатки, и только при сравнении результатов экспериментов можно сделать заключение о предпочтительности того или иного метода. Более того, даже сравнивая скорость получения и точность дифракционных данных для одного и того же образца при стандартном уточнении структуры поликристалла, можно сделать лишь качественные выводы, так как из-за разного наблюдаемого интервала межплоскостных расстояний  $d_{hkl}$  и разного поведения функции разрешения  $R(d)$  ситуация для позиционных и тепловых параметров атомов оказывается различной. Практика показывает, что на TOF- и  $\lambda_0$ -дифрактометрах одного класса, т.е. с примерно одинаковыми разрешением и полным потоком на образце, качество структурной информации оказывается также почти одинаковым, тогда как некоторые детали могут различаться очень сильно. Это связано с несколькими причинами: различие в диапазонах доступных межплоскостных расстояний, во влиянии микроструктуры образцов, в зависимостях микроструктурных параметров от переданного импульса, в описании формы дифракционных максимумов и т.п. Поэтому наиболее полную и адекватную структурную информацию для сложных объектов можно получить при комплексном использовании дифрактометров обоих типов.

Заметим, что времяпролётный метод может быть реализован и на источнике нейтронов с непрерывным потоком с помощью периодического прерывания потока нейтронов. Более того, сам метод так и возник, а собственно импульсные источники создавались уже под него. Поэтому с точки зрения дифрактометрии термин "импульсный источник" имеет более общий смысл, чем "тип устройства, генерирующего нейтроны".

#### 4. Некоторые исторические аспекты появления времяпролётных дифрактометров

В истории появления нейтронного  $\lambda_0$ -дифрактометра нет никаких неожиданных моментов, и, соответственно, никаких споров о приоритете его создания не ведётся. Напротив, ситуация с TOF-дифрактометром до сих пор представляется несколько запутанной. Например, в сравнительно недавней статье [9] утверждается, что времяпролётный метод был предложен польскими физиками Б. Бурасом и Е. Лециевичем: "Времяпролётный (TOF) метод был предложен полвека тому назад Бурасом и Лециевичем как эффективная альтернатива технике с кристаллическим монохроматором"<sup>1</sup>. Однако нетрудно убедиться в том, что это утверждение является, по крайней мере, не совсем корректным.

Сам по себе TOF-метод в нейтронной спектроскопии был известен с середины 1930-х годов, когда был сделан первый механический прерыватель нейтронного потока [10], в том числе для монохроматизации нейтронных пучков [11]. В начале 1950-х годов идея использовать TOF-метод на импульсном источнике для регистрации дифракции высказывалась П.А. Эгелстафом, в частности, на Кристаллографическом конгрессе в 1954 году [12]. Совершенно определённые свидетельства относительно этого содержатся в статье Р.Д. Лауда [13]. Более того, именно в работе [13] не только приведена идея, но и дано уже вполне законченное теоретическое обоснование дифракции с использованием времяпролётного метода, в том числе приведены формулы для интенсивности дифракционных пиков. Следующим важным событием в развитии TOF-метода в дифракции стал большой доклад П.А. Эгелстафа в 1961 г. на симпозиуме в Сакле [14], в котором он обсуждал конкретную схему TOF-дифрактометра. На этом симпозиуме присутствовал польский физик Б. Бурас, которого, судя по всему, именно доклад П.А. Эгелстафа подвигнул впоследствии к попытке практически реализовать высказанные в этом докладе идеи.

Вот несколько цитат, из которых следует, что сама по себе TOF-дифракция в начале 1960-х годов уже не была чем-то загадочным, и фактически дело было за малым — надо было поставить конкретный эксперимент. Из статьи Р.Д. Лауда [13]: "Импульсный источник медленных нейтронов в сочетании с времяпролётной аппаратурой идеально подходит для такой техники [дифракции по времени пролёта]. Эгелстаф неоднократно подчёркивал, что электронные ускорители способны производить потоки тепловых нейтронов, в среднем равные потокам на современных реакторах или превосходящие

<sup>1</sup> "The Time-of-Flight (TOF) method for neutron diffraction was proposed half a century ago by Buras and Leciejewicz as a very efficient alternative to the crystal monochromator technique" [9].

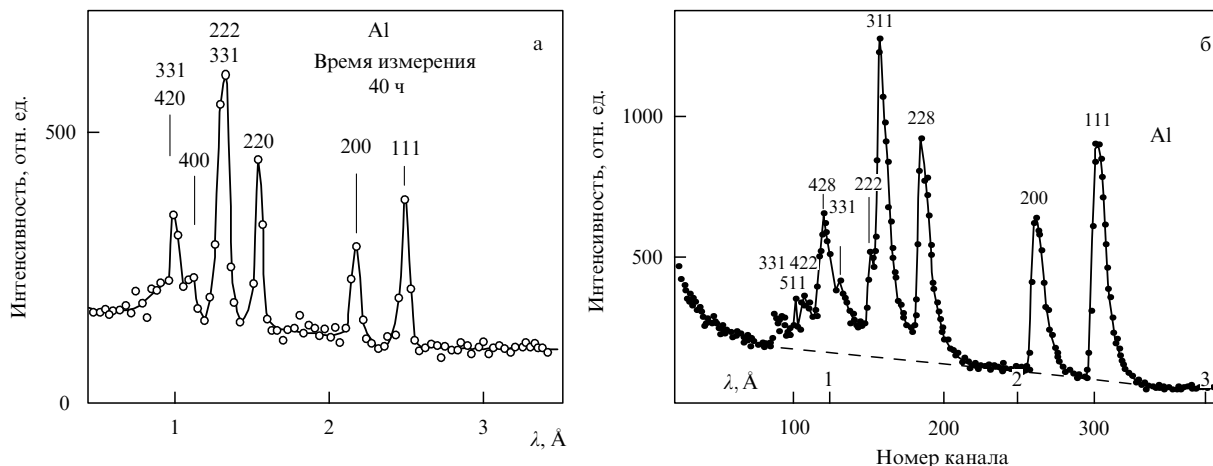


Рис. 3. Первые нейтронограммы порошка Al, измеренные на ТОF-дифрактометрах. (а) Нейтронограмма, полученная на стационарном реакторе EWA (время измерения 40 ч). Пролётная база 4,76 м. (б) Нейтронограмма, полученная на импульсном реакторе ИБР-1 (время измерения 11 ч). Пролётная база 15,70 м. Показаны зависимости интенсивности зарегистрированных детектором нейтронов от длины волны и указаны индексы Миллера дифракционных пиков. (Из работы [15].)

их"<sup>2</sup>. Из статьи П.А. Эгелстафа [14]: "В случае нейтронов времяпролётную технику можно рассматривать как альтернативу дифракции с кристаллическим монохроматором. Импульсным источником нейтронов может быть ускоритель или прерыватель на реакторе"<sup>3</sup>. Из статьи Б. Бураса и др. [15]: "В случае нейтронов времяпролётную технику можно рассматривать как альтернативу вышеупомянутому традиционному методу. Это было подчеркнuto независимо П.А. Эгелстафом и в ходе дискуссии по программе быстрого импульсного реактора в ОИЯИ в Дубне"<sup>4</sup>. Из статьи И.М. Франка [16]: "Уже с самого начала при обсуждении работ, планируемых на ИБР, было очевидно, что в дифракции при заданном угле отражения нет необходимости в монохроматизации нейтронов, так как различные нейтроны, удовлетворяющие условию Брэггов, имеют различную скорость и разделены по времени пролёта".

И здесь следует отдать должное Б. Бурасу — именно он инициировал и провёл первые реальные дифракционные ТОF-эксперименты. О том, как это было сделано, есть его подробные воспоминания, опубликованные в сборнике [3]. Самые первые эксперименты были проведены на двухмегаваттном стационарном реакторе EWA (Experimental Water Atomic) в ядерном центре Польши (Сверк, недалеко от Варшавы). Импульсный пучок нейтронов (с длительностью импульса  $\approx 80$  мкс) создавался прерывателем, полная пролётная база прерыватель–образец–детектор составляла около 5 м. Поток нейтронов был невелик, и измерение первых нейтронограмм

длилось вплоть до 40 ч при массе образца из Al около 200 г. После увеличения телесного угла детектора и перехода на BF<sub>3</sub>-счётчики время набора данных удалось снизить до 4 ч. Разрешающая способность также оказалась не очень хорошей ( $\Delta d/d \approx 0,025$ ), но главная цель была достигнута — экспериментально была подтверждена работоспособность метода. Результаты этих работ опубликованы в статье [17].

Однако первые реальные эксперименты с использованием времяпролётного метода, в которых были получены количественные данные о структуре ряда поликристаллов и проверены основные соотношения о связи интенсивности дифракционных пиков и их структурных факторов, были проведены в Дубне [18] в 1963 и 1964 гг. на первом в мире импульсном реакторе на выведенных пучках нейтронов.

Дифракционные эксперименты начались после приезда Б. Бураса и его сотрудников И. и Е. Сосновских в Дубну в 1963 году. Дифрактометр был собран на полной пролётной базе около 16 м, спектры регистрировались сцинтилляционным детектором на основе смеси ZnS(Ag) + <sup>10</sup>B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> площадью 300 см<sup>2</sup>, время набора данных составляло около 11 ч. Результаты этих и некоторых последующих экспериментов представлены в работе [18] и обзоре [15].

Первые нейтронограммы, полученные в Сверке и в Дубне, показаны на рис. 3. Видно, что качество спектра, измеренного на ИБР-1, намного лучше, но было件件но, что достигнутые параметры пока не позволяют вести планомерные структурные эксперименты. Достаточно сказать, что, хотя измерения проводились на самых простых соединениях с максимально возможными структурными факторами, время набора данных составляло многие часы, несмотря на то что масса образца доходила до нескольких сотен граммов. Но в то же время стало件件но, что это только начало и перспективы метода исключительно велики, в том числе в повышении светосилы и улучшении разрешения.

Итак, ключевыми событиями развития времяпролётного метода в дифракции были выступления П.А. Эгелстафа [12, 14], статья Р.Д. Лауда [13], эксперименты в Сверке и Дубне и обзорный доклад [15] на конференции в

<sup>2</sup> "A pulsed source of slow neutrons, in conjunction with time-of-flight apparatus, is ideally suited to such a technique [TOF-diffraction]. Egelstaff has repeatedly emphasized that electron accelerators are capable of providing mean fluxes of thermal neutrons for these purposes equal or superior to the fluxes of modern reactors" [13].

<sup>3</sup> "In the case of neutrons, one can consider the time-of-flight technique as an alternative to crystal diffraction. The pulsed neutron source may be an accelerator source or a chopper based on a reactor" [14].

<sup>4</sup> "In the case of neutrons, one can consider the time-of-flight technique as an alternative to the abovementioned conventional method. This has been pointed out independently by P.A. Egelstaff and in the course of a discussion on the program for the fast pulsed reactor in the JINR in Dubna" [15].

Женева в 1964 г. Только несколько лет спустя, в 1968–1969 гг., появились сообщения о дифракционных время-пролётных экспериментах в Харуэлле (Англия) [7, 19], Трое (США) [20] и Тохоку (Япония) [21]<sup>5</sup>.

### 5. Работы по дифракции нейтронов на первом импульсном реакторе в Дубне

На стадии планирования строительства первого импульсного реактора ИБР-1 предполагалось, что он будет использоваться для решения задач ядерной физики. Но уже на этапе его создания начала также обсуждаться тема физики конденсированных сред (ФКС). По воспоминаниям Е. Яника (Институт ядерной физики Польской академии наук, Краков) [22], первые подробные обсуждения состоялись ещё в 1958 г. в Дубне на совещании учёных из стран-участниц ОИЯИ по тематике работ на ИБР. В дальнейшем инициатива проведения в Дубне исследований по ФКС в основном исходила от польских физиков, которые сыграли ключевую роль в развитии этого направления на реакторах ЛНФ.

В первые несколько лет после начала работы импульсного реактора ИБР-1 фактически вся научная работа на нём велась под руководством, а часто и при непосредственном участии Ф.Л. Шапиро. В области физики конденсированных сред Ф.Л. Шапиро основное внимание уделял экспериментам по неупругому рассеянию нейтронов. В частности, одним из наиболее значительных методических достижений Ф.Л. Шапиро с сотрудниками стало развитие двух основных способов анализа неупругого рассеяния, а именно так называемых методов прямой и обратной геометрии. В первом из них анализ энергии происходит между источником нейтронов и образцом, а во втором — между образцом и детектором. Эксперименты с использованием этих методов фактически были первыми научными экспериментами по ФКС, выполненными на импульсном источнике нейтронов. Описание методов и результаты по неупругому рассеянию нейтронов в графите, фтористом литии (LiF) и ванадии были представлены в 1961 г. на совещании в Дубне [23]. Подробный анализ первых работ на ИБР-1 с использованием неупругого рассеяния нейтронов содержится в обзоре В.В. Голикова [24].

Из публикаций Ф.Л. Шапиро по дифракционной тематике выделяются обзорная [15] и оригинальная (причём без соавторов) [25] статьи. В первой из них подробно описаны дифракционные эксперименты, проведённые в предыдущие два года на реакторах в Сверке и Дубне, приведены формулы для интегральной интенсивности дифракционных пиков и разрешающей способности TOF-дифрактометра, необходимые для планирования эксперимента и обработки полученных данных, и проведено сравнение измеренных и рассчитанных структурных факторов для ряда простых веществ (Al, Pb, Zn, ZnO, Si). В заключении обзора [15] детально обсуждаются особенности возможных конкретных постановок эксперимента и задачи на будущее. При рассмотрении послед-

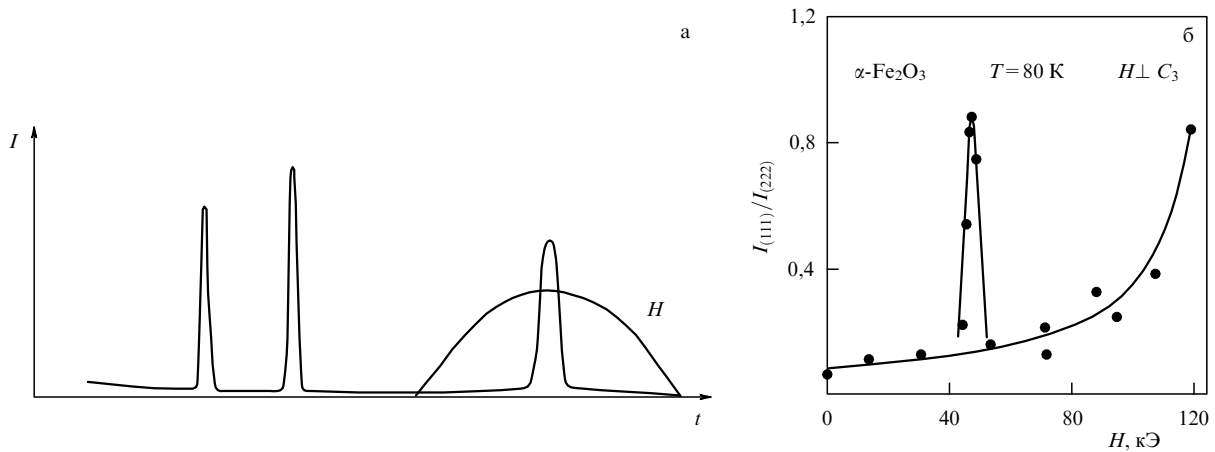
них основное внимание уделено идее импульсного воздействия на образец, синхронизованного с импульсами источника.

В оригинальной статье [25] изложен возможный метод определения фаз структурных факторов в кристаллах, имеющих атомы с магнитным моментом, посредством изменения направления вектора намагниченности. В основе этой идеи лежит возможность управления величиной структурных факторов, т.е. она близка к той, на которой основаны методы аномального рассеяния и изоморфного замещения, широко применяющиеся в настоящее время в дифракции синхротронного излучения. Метод очень сложен в реализации, и он практически никогда не использовался, но то, как он изложен, показывает глубокое понимание сути проблемы. Стоит отметить, что именно "фазовая проблема" в те годы считалась одной из самых сложных в структурном анализе кристаллов. Ей уделялось повышенное внимание, и предложить новый оригинальный метод её решения было совсем непросто. Со временем выяснилось, что использование современных источников рентгеновского и синхротронного излучений и статистических методов анализа большого числа измеренных интенсивностей позволяет получать информацию о фазах структурных факторов почти в автоматическом режиме. А для проведения нейтронного структурного анализа вполне достаточно использовать "рентгеновские" фазы, т.е. специфические нейтронные способы определения фаз структурных факторов в целом утратили какое-либо значение.

На самом деле, сравнительно небольшое число опубликованных работ по теме конденсированных сред в соавторстве с Ф.Л. Шапиро очень условно. Дело в том, что Ф.Л. Шапиро с большой неохотой соглашался на соавторство, если текст статьи не был им самим написан. Характерным примером является работа [26] об определении фактора Дебая – Валлера вольфрама, который был необходим для расчёта амплитуды взаимодействия нейтрона с электроном из дифракционных данных, полученных на изотопе вольфрама <sup>186</sup>W [27]. Ф.Л. Шапиро подробно объяснил, что для расчёта следует использовать идею об однозначной связи теплоёмкости одноатомного вещества с его фактором Дебая – Валлера, поскольку обе эти характеристики определяются фоновым спектром кристалла. Помимо того, Ф.Л. Шапиро разыскал в литературе подробные данные по теплоёмкости вольфрама и контролировал проведение расчётов, но стать соавтором написанной по результатам вычислений статьи наотрез отказался, и в результате его имя осталось только в благодарностях. Насколько нам известно, аналогичная ситуация возникала и с оригинальными работами по коэффициенту самодиффузии этана вблизи критической точки жидкость – пар и по воздействию импульсных магнитных полей на антиферромагнитные кристаллы.

До конца 1970-х годов в ЛНФ на реакторе ИБР-1 после первых демонстрационных дифракционных работ в 1963–1964 гг. было выполнено несколько экспериментов, важных с научной и методической точек зрения. Уже в 1965 г. были измерены нейтронограммы поликристалла  $\text{ViFeO}_3$ , из которых удалось определить направление магнитных моментов ионов железа относительно кристаллографических осей [28]. Успеху эксперимента способствовала важная особенность TOF-дифрактометра — при фиксированном угле рассеяния его разрешаю-

<sup>5</sup> После сдачи рукописи в печать нам стала известна работа I.M. Sosnowska "The birth of time-of-flight (TOF) neutron powder diffraction at pulsed neutron source" [71], в которой приведено много интересных подробностей о начальном этапе развития времяпролётного метода на импульсных источниках нейтронов. (Добавлено при корректуре. — Ред.)



**Рис. 4.** (а) Временная диаграмма спектра рассеянных на монокристалле нейтронов и импульса магнитного поля  $H$  (отрезок синусоиды), длительность которого может варьироваться в пределах 0,5–3 мс. (б) Зависимость интенсивности пика (111) гематита, нормированной на интенсивность "ядерного" пика (222), от амплитуды импульсов магнитного поля (из работы [32]). При  $H \approx 4,95$  Тл наблюдается пик аномального рассеяния.  $C_3$  — ромбоэдрическая ось.

щая способность улучшается с возрастанием межплоскостного расстояния. Польский физик И. Сосновска, одна из соавторов этой работы, в 1967 г. защитила диссертацию по этой теме.

В 1967 г. А. Холасом был предложен и в следующем году реализован на ИБР-1 метод фокусировки нейтронов по времени (или геометрической фокусировки) [29], позволяющий заметно увеличить светосилу ТОФ-дифрактометра без ухудшения разрешающей способности. Независимо немного ранее этот метод предложил Дж. Карпентер в Аргоннской национальной лаборатории (Argonne National Laboratory, ANL) (США) [30], но первый сфокусированный ТОФ-дифрактометр был создан в Дубне. Суть метода состоит в том, что при дифракции, т.е. при выполнении условия Вульфа–Брэгга, имеется полная корреляция между углом рассеяния и длиной волны (скоростью) нейтрона и время пролёта нейтрона от источника до детектора может быть сделано постоянным для нейтронов с разной длиной волны, если они проходят разные пути. Например, для замедлителя и детектора, имеющих вид пластин, при соблюдении определённых условий (подробнее см. в [2]) в первом приближении геометрический вклад в функцию разрешения равен нулю. В экспериментах с поликристаллами этот метод позволяет примерно в пять раз увеличить светосилу дифрактометра без заметного ухудшения разрешающей способности, и он до сих пор продолжает широко использоваться.

В 1967 г. в ЛНФ были предложены и в последующие годы реализованы (см. в книге [27]) дифракционные эксперименты, целью которых являлось определение амплитуды взаимодействия нейтрона с электроном, связанной с не равным нулю среднеквадратичным радиусом распределения заряда в нейтроне ( $n$ – $e$ -взаимодействие). Эти эксперименты стали примером применения дифракции медленных нейтронов для определения ядерно-физических констант (когерентных длин рассеяния) и констант, непосредственно связанных с кварковой структурой нуклонов. Идея экспериментов основана на сравнительно редкой ситуации — по предварительным оценкам, вследствие интерференции потенциального и резонансного рассеяния у изотопа  $^{186}\text{W}$  его нейтронная когерентная длина рассеяния близка к нулю. Соответ-

ственно, относительный вклад  $n$ – $e$ -взаимодействия в полное сечение рассеяния резко увеличивается.

В качестве первого шага необходимо было измерить длины рассеяния всех основных изотопов вольфрама. Для этого были приготовлены четыре порошковых образца, один из которых представлял собой естественную смесь изотопов вольфрама, остальные были обогащены изотопами  $^{182}\text{W}$ ,  $^{184}\text{W}$  и  $^{186}\text{W}$  до 80–90%. Измерения проводились на реакторе ИБР-1, работавшем на средней мощности 6 кВт. От обогащённой  $^{186}\text{W}$ -смеси действительно не удалось наблюдать брэгговских пиков, несмотря на очень большие время измерения (159 ч) и массу образца (77 г). Когерентные длины рассеяния изотопов  $^{182}\text{W}$ ,  $^{183}\text{W}$ ,  $^{184}\text{W}$  и  $^{186}\text{W}$  определялись из решения системы четырёх уравнений для измеренных интенсивностей дифракционных пиков. Были получены когерентные длины рассеяния (в единицах  $10^{-12}$  см)  $b_{182} = 0,833(14)$ ,  $b_{183} = 0,43(5)$ ,  $b_{184} = 0,759(9)$ ,  $b_{186} = -0,119(5)$  [31]. Впоследствии эти величины были несколько уточнены, но в целом они оказались правильными. Дальнейшие эксперименты по определению амплитуды  $n$ – $e$ -взаимодействия были проведены на монокристалле из  $^{186}\text{W}$  на стационарном реакторе в Обнинске.

Идея импульсного воздействия на образец, синхронизованного с импульсами источника, подробно изложенная в обзоре [15], на ИБР-1 была реализована уже в 1968 г., а именно впервые в мировой практике была создана импульсная магнитная установка (ИМУ), оснащённая ТОФ-дифрактометром, и на ней была выполнена серия экспериментов с монокристаллом гематита,  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ , при амплитуде магнитного поля до 12 Тл [32]. Специально для этих экспериментов реактор при мощности 6 кВт работал в режиме "редких импульсов", а именно на частоте 0,2 Гц, что было необходимо для восстановления исходного состояния ИМУ между импульсами. Максимальные значения стационарных магнитных полей, используемых в то время в нейтронных экспериментах, не превышали 4,5 Тл. Разрешение по времени, которое может быть достигнуто в таких экспериментах, в зависимости от коллимации первичного пучка составляет от 2 до 10 мкс, что соответствует разрешению по амплитуде магнитного поля около 2%. На рисунке 4 показано, как импульс поля совмещается с дифракционным пиком, а

**Таблица 1.** Основные типы структурных задач, решаемых на TOF-дифрактометрах, и требования к разрешающей способности, светосиле и детекторной системе дифрактометра

Задача	Разрешение	Светосила	Детектор	Примечание
Структура монокристалла	Среднее	Средняя	Двухкоординатный ПЧД	Позиционное разрешение детектора $\approx 2$ мм
Структура поликристалла	Очень высокое	Средняя	Большой площади с $\Omega > 1$ ср	Обязательны большие углы рассеяния ( $> 150^\circ$ )
Магнитная структура	Среднее	Средняя	Большой площади с $\Omega > 1$ ср	Измерение больших ( $> 10 \text{ \AA}$ ) $d_{hkl}$
Эксперимент в реальном времени	Среднее	Очень высокая	Несколько детекторов на разных, в том числе малых, углах $2\theta$	Большой интервал по $d_{hkl}$
Высокое давление	Среднее	Очень высокая	Несколько детекторов на разных углах $2\theta$	Большой интервал по $d_{hkl}$ , низкий фон
Макромолекулярные структуры	Среднее	Высокая	Несколько детекторов на разных, в том числе малых, углах $2\theta$	Измерение очень больших ( $\approx 60 \text{ \AA}$ ) $d_{hkl}$
Локальные искажения структуры	Высокое	Высокая	Большой площади с $\Omega > 1$ ср	Обязательны большие передачи импульса, $Q > 40 \text{ \AA}^{-1}$
Микроструктура материалов	Высокое	Очень высокая	Большой площади при $2\theta \approx 90^\circ$	Средний интервал по $d_{hkl}$

также представлен один из первых результатов для гематита.

В дальнейшем конструкции ИМУ и импульсных магнитов неоднократно совершенствовались, и в 1988 г. на реакторе ИБР-2 начал действовать спектрометр СНИМ-2<sup>6</sup>, на котором были выполнены многочисленные исследования по кинетике магнитных ориентационных фазовых переходов 1-го рода, фазовой перестройке при спин-флор-переходах в коллинеарных антиферромагнетиках, магнитному упорядочению, индуцированному внешним полем и др. Подробное обсуждение методических основ нейтронных исследований в импульсных магнитных полях и основных физических результатов, полученных на реакторах ЛНФ, содержится в обзоре В.В. Нитца [33].

## 6. Специализация времяпролётных дифрактометров

Помимо различий во взаимодействии с веществом, между рентгеновскими лучами и нейтронами есть ещё одно различие, имеющее принципиальный характер. Поток нейтронов даже на самых современных источниках не превышает  $10^{15} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ , тогда как лабораторный рентгеновский дифрактометр обеспечивает поток квантов  $\approx 10^{18} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ , а на современных источниках синхротронного излучения поток может быть ещё на 10 порядков больше. Это приводит к необходимости оперировать в нейтронных экспериментах заметно большими объёмами образцов и временем набора необходимой статистики, чем в рентгеновских. Ещё одним следствием недостаточной светосилы нейтронных дифрактометров является необходимость их оптимизации для решения тех или иных конкретных задач. Таким образом, нейтронные дифрактометры различаются не только

по режиму сканирования обратного пространства кристалла, но и по типу основной экспериментальной задачи.

Принципиальная схема TOF-дифрактометра, подробно рассмотренная в обзоре [2], не претерпела каких-либо существенных изменений за 50 лет, прошедших с момента его появления. Более того, исходная схема TOF-дифрактометра (рис. 2б) долгое время рассматривалась как универсальная, т.е. позволяющая решать большинство возникающих задач. Однако в последние 20 лет чётко проявилась тенденция к специализации TOF-дифрактометров, а именно к внедрению специфических конструкций некоторых их узлов, позволяющих оптимально решать те или иные структурные задачи.

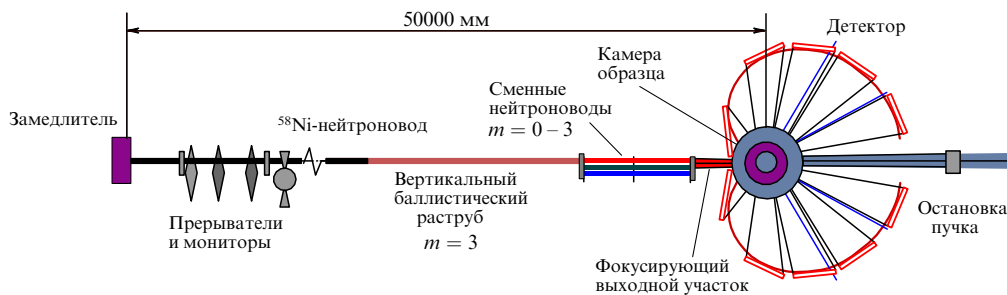
С некоторой степенью условности можно выделить восемь типов экспериментов, проведение которых требует оптимизации дифрактометра по основным характеристикам (разрешению и светосиле) и по конструкции детекторной системы (табл. 1). В последнем столбце табл. 1 указаны некоторые дополнительные требования. Подробное рассмотрение вариантов конструкции таких дифрактометров выходит за рамки настоящего обзора. Поэтому ниже для иллюстрации современных тенденций рассмотрен только порошковый дифрактометр высокого разрешения, который непременно входит в состав парка спектрометров как на стационарных, так и на импульсных нейтронных источниках.

**TOF-дифрактометр для структурных исследований поликристаллов.** Начиная с первых экспериментов, выполненных в 1948–1949 гг. на ядерных реакторах, структурные исследования поликристаллов составляют основную долю в общем потоке нейтронных дифракционных работ. Принципиальная возможность анализа той или иной кристаллической структуры определяется прежде всего уровнем разрешающей способности дифрактометра.

Как правило, в нейтронном эксперименте ставится задача уточнения известной структуры или анализа её изменений при внешнем воздействии на изучаемое веще-

<sup>6</sup> СНИМ — аббр. от *Спектрометр для нейтронных исследований с импульсным магнитным полем*.





**Рис. 5.** Схема TOF-дифрактометра WISH (ISIS), предназначенного для совместного анализа кристаллической и магнитной структур поликристаллов. Особенности установки являются сравнительно большое расстояние между источником и образцом ( $L = 50$  м), наличие системы дополнительных прерывателей, позволяющей выбирать требуемый диапазон по  $d_{hkl}$ , суперзеркального нейтронного канала баллистического типа с коэффициентом, характеризующим увеличение критического угла отражения от стенок нейтронного канала вследствие их многослойной структуры,  $m = 3$ , и детектора, охватывающего углы рассеяния от  $10^\circ$  до  $175^\circ$ .

ство. Эта задача решается посредством минимизации функционала, включающего в себя измеренные и рассчитанные интенсивности дифракционных пиков, причём в формулу для расчёта интенсивностей входят как уточняемые параметры координаты атомных позиций и факторы их заполнения, а также тепловые факторы атомов. Корректная математическая постановка этой задачи предполагает, что на один уточняемый параметр приходится несколько (от трёх до семи) экспериментальных точек, в качестве которых выступают интенсивности отдельных дифракционных пиков.

Таким образом, условием успешного решения структурной задачи является измерение необходимого количества интенсивностей пиков. Можно показать, что при условии слабой зависимости функции разрешения  $R = \Delta d/d$  от межплоскостного расстояния  $d$  количество отдельно измеряемых на TOF-дифрактометре пиков от кристалла составит  $N \approx 1/(3\Delta d/d)$ , т.е. улучшение разрешения в несколько раз позволяет во столько же раз увеличить число уточняемых параметров. В настоящее время в нескольких нейтронных центрах достигнут уровень разрешающей способности от  $R \approx 0,001$  и вплоть до  $R \approx 0,0005$ , следовательно, на этих дифрактометрах возможно уточнение структур с числом независимых параметров до нескольких десятков.

Конструктивными особенностями дифрактометра высокого разрешения с монохроматическим пучком ( $\lambda_0$ -дифрактометр) являются большой угол ( $\theta_M > 120^\circ$ ) отражения от монохроматора с малой мозаичностью и хорошая коллимация падающего на монохроматор пучка. Именно по такому принципу в Институте Лауэ–Ланжевена (Institut Laue–Langevin (ILL), Гренобль) был сконструирован первый  $\lambda_0$ -дифрактометр высокого разрешения D1A [34], у которого в минимуме кривой разрешения  $\Delta d/d \approx 0,002$ .

На источниках нейтронов с коротким импульсом высокое разрешение TOF-дифрактометра может быть достигнуто, если применяется сравнительно тонкий замедлитель, а пролётное расстояние  $L$  более 50 м. Наиболее известным примером является HRPD (High Resolution Powder Diffractometer) на импульсном источнике нейтронов и мюонов ISIS<sup>7</sup> в Лаборатории Резерфорда–Эплтона (Rutherford Appleton Laboratory, RAL) [35]

с  $L \approx 100$  м, в принципе позволяющий получить  $\Delta d/d \approx 0,0004$ .

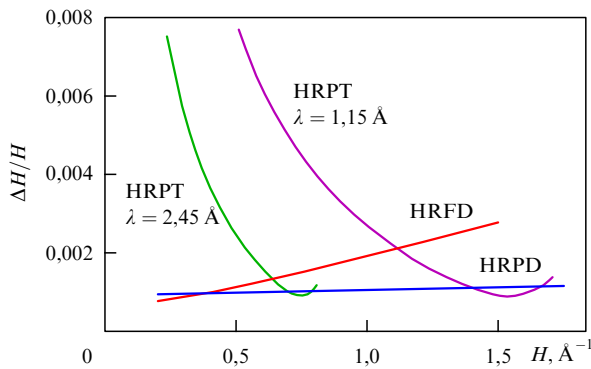
Основная тенденция в развитии TOF-дифрактометров на источниках с коротким импульсом состоит в использовании усложнённых конструкций зеркальных нейтронных каналов (в частности, суперзеркальных, баллистических [36]) для проводки нейтронного пучка на большое расстояние и детекторов с большим, вплоть до нескольких стерадианов, телесным углом.

Примерами современных TOF-дифрактометров с разрешением на уровне 0,001 и лучше являются установки WISH (Wide angle In a Single Histogram) ( $L = 50$  м) на ISIS, POWGEN (Powder Diffractometer Next Generation) ( $L = 60$  м) на SNS в Окриджской национальной лаборатории (Oak Ridge National Laboratory, ORNL) и SuperHRPD ( $L = 94$  м) на J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex). Высокое разрешение этих дифрактометров обусловлено коротким импульсом источника ( $\Delta t \approx 15–50$  мкс) и большой пролётной базой, а достаточно высокий уровень светосилы обеспечивается большой площадью детекторной системы. Например, у POWGEN детектор покрывает площадь  $7$  м<sup>2</sup>, формируя телесный угол  $\Omega \approx 1,5$  ср.

В качестве иллюстрации на рис. 5 показана схема TOF-дифрактометра WISH, основным назначением которого является совместный анализ кристаллической и магнитной структур поликристаллов. Дифрактометр установлен на пучке холодных нейтронов с максимумом распределения при  $\lambda \approx 4$  Å, суперзеркальный нейтронный канал с  $m = 3$  обеспечивает высокое пропускание холодных нейтронов, а детектор, охватывающий углы рассеяния от  $10^\circ$  до  $175^\circ$ , позволяет одновременно регистрировать достаточно большое количество дифракционных пиков в очень широком диапазоне межплоскостных расстояний. Последнее обстоятельство и даёт возможность одновременного анализа кристаллической и магнитной структур изучаемого вещества.

На импульсных источниках с длинным импульсом для получения высокого разрешения необходимо сокращать длительность импульса, применяя тот или иной тип механического прерывателя. Практически используются или стандартный однощелевой прерыватель, с которым постановка эксперимента и способ накопления дифракционных данных ничем не отличается от таковых в случае TOF-дифрактометра на источнике нейтронов с коротким импульсом, или многощелевой прерыватель с большим числом регулярно расположенных щелей оди-

<sup>7</sup> ISIS не является аббревиатурой. Источник нейтронов назван по имени древнеегипетской богини Исиды.



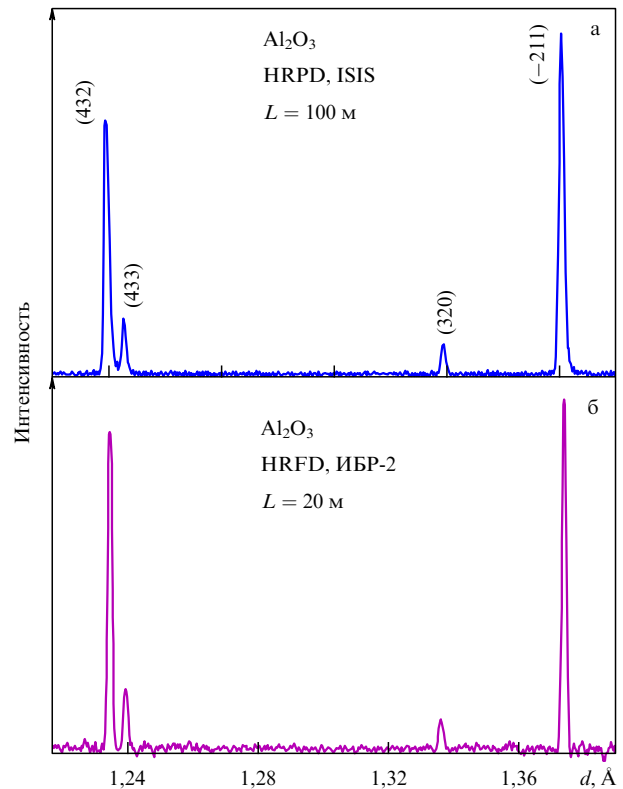
**Рис. 6.** Функции разрешения для поликристаллов двух TOF-дифрактометров, HRFD (High Resolution Fourier Diffractometer) и HRPD, и  $\lambda_0$ -дифрактометра HRPT (High Resolution Powder diffractometer for Thermal neutrons) (SINQ (Schweizerische Intensive Neutronen-Quelle) Института им. П. Шеррера (Paul Scherrer Institute, PSI)) для двух длин волн, построенные в зависимости от длины вектора в обратном пространстве  $H$ . В то время как для TOF-дифрактометров функция разрешения слабо зависит от  $H$ , для  $\lambda_0$ -дифрактометра характерны наличие глубокого минимума и ухудшение разрешения при малых  $H$ .

наковой ширины, получивший название фурье-прерывателя. В последнем случае для получения дифракционного спектра необходимо провести корреляционный анализ сигналов от источника, прерывателя и детектора, что осуществляется либо онлайн с помощью специальной электроники, либо посредством компьютерных вычислений после накопления исходных данных.

Функциональные зависимости разрешающей способности от межплоскостного расстояния или от переданного импульса для трёх перечисленных типов дифрактометров высокого разрешения заметно различаются. Общей особенностью  $\lambda_0$ -дифрактометров является наличие в  $R(H)$ , где  $H = 1/d$  — длина вектора в обратном пространстве, довольно глубокого минимума, положение которого в основном определяется углом отражения первичного пучка от монохроматора. Напротив, для TOF-дифрактометров функция разрешения слабо зависит от  $H$  (рис. 6). Эти особенности часто оказываются исключительно важными, и они обязательно должны учитываться при планировании экспериментов.

На импульсном реакторе ИБР-2 фурье-дифрактометр высокого разрешения (HRFD) действует с 1994 г., и в нашем обзоре [2] были изложены основные сведения по методу нейтронной фурье-дифрактометрии и конструкции HRFD, а также приведены примеры первых структурных экспериментов. Кроме того, в недавнем обзоре [37] рассмотрена история развития этого метода, подробно проанализированы его технические и методические особенности и обсуждена проводимая на HRFD научная программа. Поэтому здесь мы только кратко изложим некоторые принципиальные моменты использования фурье-прерывателя на источнике с длинным импульсом, делая акцент на его положительных и отрицательных особенностях.

Фурье-прерыватель получил такое название в связи с тем, что он имеет периодическую функцию пропускания, близкую по форме к синусоиде. Поэтому в первом приближении при фиксированной частоте вращения прерывателя интенсивность рассеянных нейтронов  $I(\omega)$  представляет собой фурье-гармонику сечения рассеяния нейтронов образцом. Следовательно, измеряя  $I(\omega)$  в широком диапазоне частот, можно восстановить фурье-образ,



**Рис. 7.** Сравнение участков нейтронограмм, измеренных на одном и том же стандартном поликристалле  $\text{Al}_2\text{O}_3$  TOF-дифрактометрами HRPD (ISIS) (а) и HRFD (ИБР-2) (б). В этой области спектра  $\Delta d/d \approx 0,0016$  для обоих дифрактометров, хотя пролётное расстояние на HRFD в пять раз короче, чем на HRPD. Как видно, уровень фона на HRFD несколько выше, чем на HRPD, что связано с его корреляционной составляющей. Индексы Миллера дифракционных пиков указаны для ромбоэдрической установки.

т.е. получить сечение рассеяния  $\sigma(t)$ , где  $t$  — время пролёта, связанное с переданным при рассеянии импульсом или межплоскостным расстоянием в кристалле.

Основное достоинство фурье-метода — высокое разрешение при сравнительно малом пролётном расстоянии. Для HRFD расчётное значение  $\Delta d/d$  составляет 0,0005 при полном пролётном расстоянии от прерывателя до образца всего 20 м. Такое же разрешение на SNS с коротким импульсом может быть достигнуто при  $L \approx 100$  м (рис. 7). В этом случае возникает серьёзная проблема перекрытия спектров нейтронов от соседних импульсов источника. Так, на дифрактометре HRPD (ISIS) с  $L \approx 100$  м при частоте повторения импульсов источника 50 Гц одновременно наблюдаемый детекторами обратного рассеяния диапазон по  $d_{hkl}$  составляет всего 0,4 Å и, чтобы его расширить хотя бы до 2 Å, приходится с помощью дополнительных прерывателей удалять четыре импульса из пяти, т.е. работать с меньшей в пять раз интенсивностью.

Ещё одним важным достоинством фурье-метода является возможность оптимизации разрешающей способности в зависимости от типа решаемой задачи — для этого надо всего лишь изменить скорость вращения фурье-прерывателя, поскольку временная компонента функции разрешения линейно связана с максимальной частотой модуляции нейтронного пучка.

Основные проблемы при использовании фурье-прерывателя обусловлены корреляционной природой нака-

пливаемой информации. Как результат, неизменно атрибутом измеренных дифракционных спектров является так называемый корреляционный фон, появление которого связано с неоднозначностью отнесения конкретного события в детекторе к тому или иному времени пролёта. Кроме того, корреляционная природа данных и некоторые технические проблемы при модуляции интенсивности первичного пучка приводят к сравнительно сложному профилю дифракционных пиков, который не поддаётся описанию какими-либо аналитическими функциями с необходимой точностью.

Среди возможных способов решения этих проблем рассматривается как один из наиболее эффективных в настоящее время метод накопления первичных данных в списочном режиме (в англоязычной литературе — list mode). С помощью этого метода происходит накопление не гистограммы (нейтронограммы), а одиночных событий, каждое из которых снабжается абсолютным временем регистрации и некоторыми признаками, в частности номером сработавшего детектора. Образованные таким образом "слова" записываются в память достаточно большого объёма. К преимуществам такого способа записи информации относятся возможность регистрации данных с большого количества независимых детекторных элементов, а также то, что экспериментальные данные сохраняются в исходном виде. Соответственно, появляется возможность проводить программную обработку экспериментальных данных с введением необходимых поправок, среди которых наиболее важной является поправка на рассогласование между пилообразной функцией пропускания прерывателя и отвечающей ей последовательностью электронных сигналов.

Резюмируя, можно сказать, что фурье-дифрактометр обладает всеми достоинствами обычного времяпролётного дифрактометра, но в отличие от последнего позволяет достичь исключительно высокого разрешения при сравнительно небольшом пролётном расстоянии, что способствует увеличению потока нейтронов на образце и снижению стоимости установки. Важным обстоятельством является слабая зависимость функции разрешения от межплоскостного расстояния в довольно широком интервале. Проблема перекрытия импульсов от источника, весьма неприятная для обычных времяпролётных спектрометров, для фурье-дифрактометра отсутствует. Наиболее эффективно фурье-дифрактометр может быть использован на источнике нейтронов с длинным (более 300 мкс) импульсом.

## 7. Научные задачи, решаемые на современных времяпролётных дифрактометрах

Фактически каждая из структурных научных задач, перечисленных в табл. 1, может решаться на любом из импульсных нейтронных источников, действующих в настоящее время, поскольку все эти источники оснащены соответствующими специализированными времяпролётными дифрактометрами. Поэтому в разделах 7.1–7.6 рассмотрены решения нескольких наиболее интересных задач, в основном на примере работ, выполненных на реакторе ИБР-2, которые, кроме того, демонстрируют, насколько удалось развить технику и методику, зародившиеся в ЛНФ 50 лет тому назад.

### 7.1. Исследования монокристаллов

Наиболее важным достоинством TOF-дифрактометра для монокристаллов является возможность трёхмерного анализа больших объёмов обратного пространства кристалла без каких-либо его вращений. Это может быть достигнуто с помощью уже отмеченной в разделе 3 комбинации сканирования по времени пролёта нейтрона и по двум координатам 2D ПЧД. В наиболее полном виде эта возможность реализована на дифрактометре SXD (Single Crystal Diffractometer) (ISIS) [38], детекторная система которого состоит из 11 двухкоординатных ПЧД, охватывающих почти половину полной сферы (49,4 %). Каждый детектор содержит 4096 чувствительных элементов с общей площадью  $192 \times 192 \text{ мм}^2$ . Такая геометрия позволяет набрать необходимое число отражений от кристалла совсем без его вращений или свести их число к минимуму. При типичном объёме кристалла  $100 \text{ мм}^3$  достаточная статистика набирается за 1–2 ч. В основном на SXD ведутся исследования органических веществ с целью установления положений атомов водорода и диффузного рассеяния, возникающего вследствие структурного беспорядка или коррелированных тепловых колебаний атомов.

Детекторная система дифрактометра DN-2 на реакторе ИБР-2 также включает в себя 2D ПЧД (пока один) с линейными размерами  $250 \times 250 \text{ мм}$  и позиционным разрешением  $\Delta x \approx 2 \text{ мм}$ , что позволяет проводить подробное 3D-сканирование обратного пространства. В качестве примера на рис. 8 показан небольшой участок дифракционной картины от монокристалла  $\text{La}_2\text{CuO}_{4,04}$ , содержащий два порядка отражения. При охлаждении этого кристалла при фазовом переходе в низкосимметричную (ромбическую) фазу вследствие трансформационного двойникования происходит расщепление узлов обратной решётки на несколько компонент, две из которых хорошо видны на рисунке. Кроме того, видны полосы диффузного рассеяния, связанные с наличием некоторой степени беспорядка в структуре кристалла.

Измеряемые на TOF-дифрактометре с 2D ПЧД распределения интенсивностей содержат до  $10^6$  экспериментальных точек, соответственно, во столько же раз увеличивается скорость эксперимента по отношению к таковой в сравнительно недавней ситуации, когда изме-

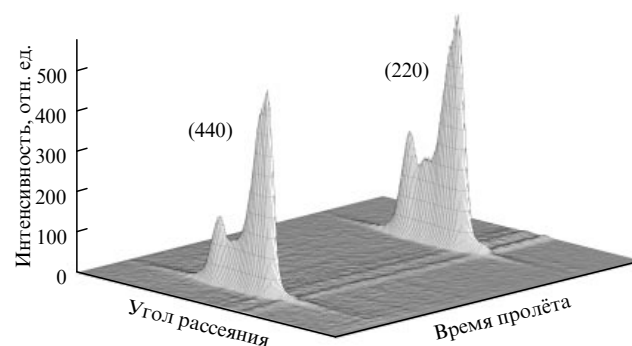


Рис. 8. Двумерное распределение интенсивностей, измеренное на дифрактометре DN-2 в интервале углов рассеяния  $\pm 5^\circ$  вдоль направления  $(hh0)$  кристалла  $\text{La}_2\text{CuO}_{4,04}$ . Видны два порядка отражения, (220) и (440), расщеплённые на компоненты. Развёртка спектра по времени пролёта и по углу рассеяния соответствует сканированию вдоль и поперёк радиуса-вектора обратной решётки. Помимо дифракционных пиков видны полосы диффузного рассеяния нейтронов.

рения проводились с помощью точечного детектора и монохроматического нейтронного пучка. Достижимое при этом практически непрерывное сканирование обратного пространства особенно важно тогда, когда заранее неизвестно, в какой области пространства находятся особенности рассеяния, например при изучении несоизмеримо модулированных структур.

## 7.2. Структурные исследования поликристаллов

На реакторе ИБР-2 структурные исследования поликристаллов в основном ведутся на дифрактометре HRFD [39]. За последние годы на нём было выполнено множество работ, представляющих практически все научные направления, востребованные в настоящее время. Уточнялись структуры высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) и водородосодержащих соединений, разнообразных оксидов (перовскитов, шпинелей, браунмиллеритов и др.), проводились эксперименты по определению макро- и микронапряжений в объёмных материалах и изделиях. Например, были получены фундаментальные результаты по структуре ртутных ВТСП и по зависимости критической температуры сверхпроводящего перехода от заполнения позиций сверхстехиометрическими анионами, кислородом и фтором (см., например, [40–42]). В серии работ [43–45] важные результаты получены по мезоскопическому фазовому расщеплению в сложных оксидах марганца и формированию на его основе гигантского кислородного изотопического эффекта, проявляющегося в смене металлического состояния кристалла диэлектрическим при замене  $^{16}\text{O}$  изотопом  $^{18}\text{O}$ .

В последнее время большое внимание уделялось исследованиям всевозможных структурных аномалий [46, 47] и микроструктуры кристаллов, находящихся в наноструктурированном состоянии [48–50]. Ключевым моментом в этих работах является высокое разрешение HRFD, позволяющее определять микродеформации в кристаллитах на уровне относительного изменения межплоскостных расстояний, связанного с их напряжённым состоянием, более чем  $\varepsilon \approx 0,0008$  и средние размеры когерентно рассеивающих доменов на уровне менее чем  $L_{\text{coh}} \approx 3500 \text{ \AA}$ . Кроме того, уверенно определяются эффекты анизотропного уширения пиков. В этих случаях важным обстоятельством является слабая зависимость разрешения от межплоскостного расстояния  $d_{hkl}$ , что даёт возможность использовать большое число экспериментальных точек для анализа ширин дифракционных пиков в рамках метода Вильямсона–Холла. В этом методе строится зависимость ширины дифракционных пиков от какой-либо экспериментальной переменной — в случае TOF-дифрактометра наиболее удобно использовать в качестве такой переменной  $d_{hkl}$ . Можно показать, что для гауссова приближения для функций распределения справедливо соотношение

$$(\Delta d)^2 = C_1 + (C_2 + C_3)d^2 + C_4d^4, \quad (1)$$

где  $\Delta d$  — полная ширина пика на половине высоты (или интегральная ширина пика), константы  $C_1$  и  $C_2$  связаны с функцией разрешения дифрактометра, и они могут быть определены в эксперименте со стандартными образцами,  $C_3 \approx (2\varepsilon)^2$ ,  $C_4 \approx (k/L_{\text{coh}})^2$ ,  $k$  — близкая к единице константа Шеррера, учитывающая возможную анизотропию формы когерентно рассеивающих доменов.

Определяя некоторое количество ширин пиков и строя зависимость  $(\Delta d)^2$  от  $d^2$  в достаточно большом

интервале  $d_{hkl}$ , можно определить  $\varepsilon$  и  $L_{\text{coh}}$ . При отсутствии эффекта размера (очень большие  $L_{\text{coh}}$ ) зависимость (1) будет линейной, в противном случае — параболической. Примеры построения Вильямсона–Холла приведены на рис. 9, где показаны линейные зависимости квадрата ширины пиков от  $d^2$  для функции разрешения и для составов с большими кристаллитами и параболические зависимости при наличии эффекта размера. В последнем случае с помощью этого построения удалось показать, что размеры областей когерентного рассеяния для ядерной и магнитной структур NiO сильно различаются при среднем размере кристаллитов  $\langle D \rangle = 100 \text{ нм}$  ( $L_{\text{nuc}}/L_{\text{mag}} \approx 2,5$ ), т.е. дальний магнитный порядок на поверхности кристаллитов в значительной степени оказывается разрушенным.

В принципе на TOF-дифрактометре возможны исследования как кристаллической, так и магнитной структур поликристаллов. Однако некоторые методические особенности TOF-дифрактометра, прежде всего зависимость интенсивностей дифракционных пиков от распределения нейтронов в первичном пучке по длине волны, препятствуют прецизионному определению абсолютной величины магнитных моментов атомов. В этом случае хорошие результаты даёт совместный анализ данных, полученных на  $\lambda_0$ - и TOF-дифрактометрах.

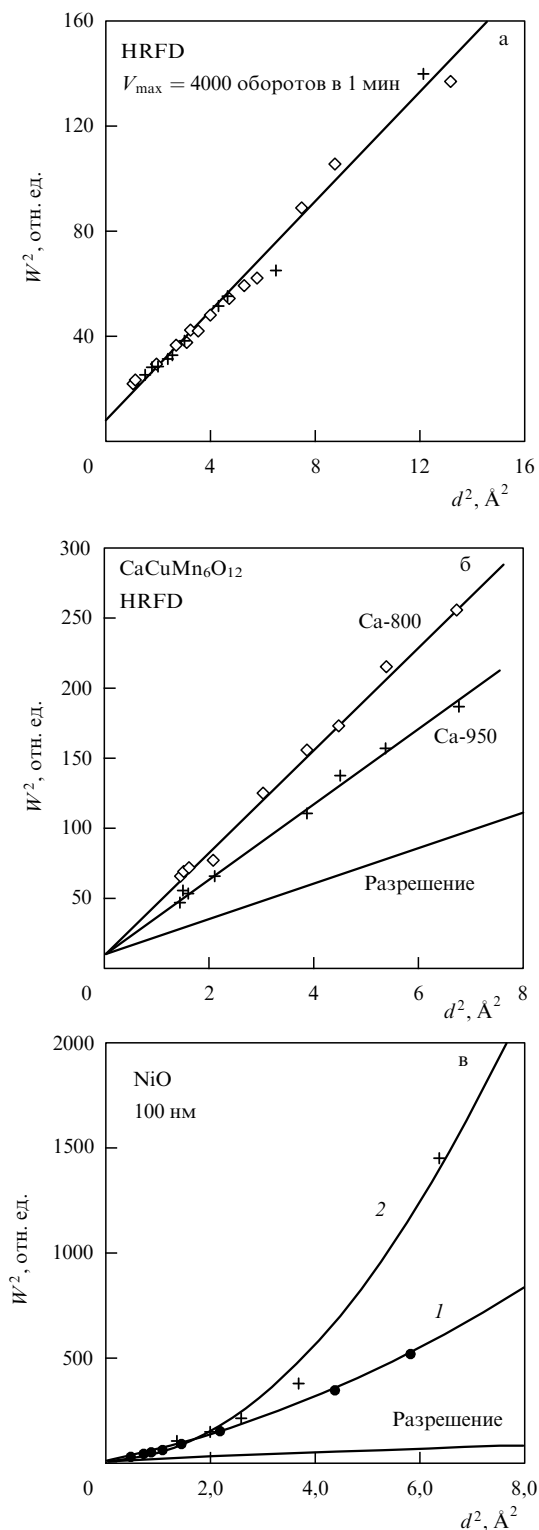
Недавним примером такого анализа являются работы [51, 52], в которых на HRFD и  $\lambda_0$ -дифрактометре HRPT (SINQ, PSI) получены прецизионные данные по кристаллической и магнитной структуре феррита меди  $\text{CuFe}_2\text{O}_4$ , температурам фазовых переходов и микроструктурным особенностям этого соединения. Полученные на HRPT данные позволили с хорошей точностью определить величины магнитных моментов ионов, находящихся в октаэдрических и тетраэдрических позициях элементарной ячейки. Замечательным фактом оказалось то, что разность между ними сохраняется постоянной во всём интервале температур существования упорядоченной магнитной структуры и соответствует спиновому моменту иона  $\text{Cu}^{2+}$ . Из этого следует, в частности, что, вопреки распространённому мнению, ионы меди и железа не обмениваются позициями при структурном переходе из тетрагональной фазы в ромбическую.

## 7.3. Исследования переходных процессов (эксперименты в реальном времени)

Исследования переходных процессов в реальном времени (real-time) стали возможными, когда резко возросла светосила нейтронных дифрактометров, которую можно определить как регистрируемую детектором в единицу времени интенсивность (число нейтронов в 1 с), ориентировочно составляющую

$$I = \Phi_0 S \frac{\Omega_d}{4\pi} \delta, \quad (2)$$

где  $\Phi_0$  — полный поток нейтронов на образце в рабочем диапазоне длин волн,  $\Omega_d$  — телесный угол детекторной системы,  $S$  — площадь образца,  $\delta$  — его рассеивающая способность. Формула (2) позволяет оценить возможную скорость счёта при известных параметрах дифрактометра. Например, на дифрактометре DN-2 полный поток нейтронов составляет  $\sim 10^7 \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ , телесный угол существующего 2D-детектора близок к 0,2 ср. При площади образца  $5 \text{ см}^2$  и его рассеивающей способности (в телесный угол  $4\pi$ )  $\delta \approx 0,1$  получаем, что полная



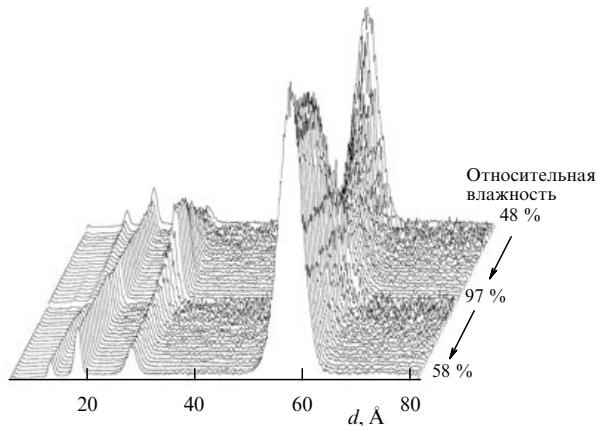
**Рис. 9.** Построения Вильямсона–Холла для функции разрешения HRFD, измеренной со стандартными образцами (а)  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (кресты) и  $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{Ca}_3\text{F}_{14}$  (NAC) (ромбы) при максимальной скорости вращения фурье-прерывателя 4000 оборотов в 1 мин, (б) для двух составов  $\text{CaCuMn}_6\text{O}_{12}$ , отожжённых при температурах 800 и 950 °С (есть эффект микронапряжений), и (в) для оксида NiO со средним размером кристаллитов 100 нм (есть эффект размера). Для NiO показаны две кривые, соответствующие кристаллической (кривая 1) и магнитной (кривая 2) областям с дальним порядком. Размер магнитных областей в NiO меньше, чем размеры кристаллических, соответственно, парабола возрастает быстрее.

скорость счёта нейтронов достигает  $I = 10^5 \text{ с}^{-1}$ . Это большая величина, которая является достаточной для анализа дифракционных спектров сравнительно простых структур при времени измерения одного спектра  $t_s \sim 1$  мин с приемлемой статистической точностью. Основной резерв для увеличения скорости счёта кроется в величине телесного угла. Полагая реальным появление детектора с  $\Omega_d \approx 2$  ср, получаем, что скорость счёта нейтронов составит  $\sim 10^6 \text{ с}^{-1}$  — это даст возможность уменьшить  $t_s$  до нескольких секунд.

Проведение экспериментов в реальном времени в ЛНФ ОИЯИ имеет длительную и богатую историю; в обзоре [2] рассмотрены такие примеры, как твердофазный химический синтез, изотопный обмен в липидных мембранах, фазовые превращения метастабильного льда высокого давления и др. (см. также обзоры [53, 54]). В этих работах показано, что возможности светосильных  $\lambda_0$ - и TOF-дифрактометров сравнимы, если изучаются процессы с характерными временами на уровне 1 мин или более. Однако TOF-дифрактометр позволяет дополнительно к дифракционным данным регистрировать малоугловое рассеяние нейтронов, т.е. следить за трансформацией макроструктурных неоднородностей в среде. Кроме того, в принципе на TOF-дифрактометре необходимую статистику можно набрать от одного импульса мощности, что подтверждается результатами модельных экспериментов. В этом случае, согласно соображениям, высказанным в работе [55], возможно изучение необратимых процессов с разрешением по времени на уровне 1 мс. Последняя величина, по-видимому, близка к предельному временному разрешению в нейтронографии необратимых процессов. Она сравнима с величинами, достигнутыми на источниках синхротронного излучения, и существенно меньше пределов, достижимых на стационарных реакторах.

Большой рабочий интервал длин волн TOF-дифрактометра позволяет с успехом изучать структуры с периодами повторяемости вплоть до нескольких десятков ангстремов, в том числе проводить с такими структурами кинетические эксперименты. Так, на дифрактометре DN-2 проводятся исследования процессов гидратации многослойных ориентированных липидных мембран. Уникальной особенностью этих экспериментов является одновременное измерение нескольких порядков отражения, что даёт возможность восстановить структурные изменения в липидном бислое в ходе его гидратации – дегидратации.

Показательным примером является эксперимент по гидратации ориентированной многослойной мембраны из дипальмитоилфосфатидилхолина (ДПФХ), в котором изучался переход из состояния с низкой относительной влажностью паров воды к состоянию с высокой относительной влажностью паров воды и обратно [56]. Для этого сухой образец, находившийся прежде в комнатных условиях (относительная влажность 46 %, температура 20 °С), помещался в алюминиевый контейнер, внутри которого устанавливалась относительная влажность 98 % насыщенным раствором соли  $\text{K}_2\text{SO}_4$  в воде с содержанием 8 %  $\text{D}_2\text{O}$  и поддерживалась температура 20 °С. Нейтронограммы регистрировались в течение  $\approx 8$  ч с постепенно увеличивающимся (от 3 до 60 мин) временем набора одного спектра. Регистрация первого спектра начиналась через 2 мин после помещения насыщенного раствора соли в измерительную камеру. После достиже-

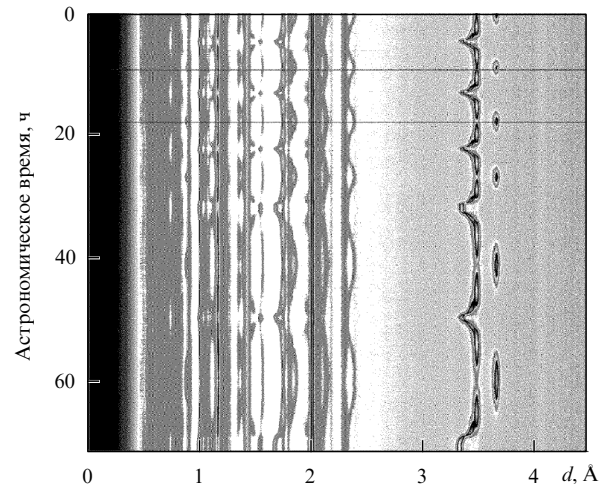


**Рис. 10.** Последовательность нейтронных дифракционных спектров от ДПФХ-мембраны, измеренных в реальном времени в процессе гидратации и последующей дегидратации мембраны. Положение первого порядка отражения изменяется в пределах 58–60 Å. Спектр, соответствующий мембране в состоянии равновесия при 58%-ной относительной влажности, содержит четыре видимых дифракционных пика. Пятый дифракционный пик виден при больших значениях влажности.

ния образцом равновесного состояния раствор соли  $K_2SO_4$  заменялся насыщенным раствором  $NaBr$ , который задаёт 58%-ную относительную влажность паров воды. Процесс дегидратации мембраны регистрировался в течение около 7 ч с временами набора одного спектра, увеличивающимися от 2 до 60 мин. Последовательность нейтронных дифракционных спектров, измеренная в этом процессе, представлена на рис. 10, из которого видно, что интенсивности дифракционных пиков очень сильно зависят от степени гидратации мембраны, что отвечает значительной перестройке атомной структуры.

Сравнительно большое число измеренных порядков отражения и стандартная процедура обратного фурье-преобразования (построение фурье-профиля) позволили восстановить структуру липидного бислоя на всех стадиях процесса с достаточно хорошей точностью. Была получена информация об изменении толщины водной прослойки между полярными головками, об изменении наклона углеводородных хвостов, а также о характерных временах различных стадий процессов. В частности, оказалось, что процесс гидратации хорошо описывается одной экспоненциальной зависимостью с характерным временем  $\tau \approx 60$  мин. Напротив, в ходе дегидратации наблюдаются сначала быстрая ( $\tau_1 \approx 15$  мин), а затем медленная ( $\tau_2 \approx 100$  мин) стадии.

В последние годы нейтронография активно используется при изучении переходных процессов в химических источниках электрического тока, в частности в Li-ионных аккумуляторах. Возможности TOF-дифрактометра идеально соответствуют такого рода экспериментам, так как в них удаётся получить подробную информацию об эволюции структурных фаз в ходе процесса заряда–разряда аккумулятора, а также об изменениях в микроструктуре материала электродов. В качестве примера на рис. 11 показана эволюция нейтронных дифракционных спектров от коммерческого цилиндрического аккумулятора типа 18650 в ходе нескольких циклов заряда–разряда, выполненных с разной скоростью. Из анализа интенсивностей и положений дифракционных пиков получают сведения о структурных деталях перехода ионов



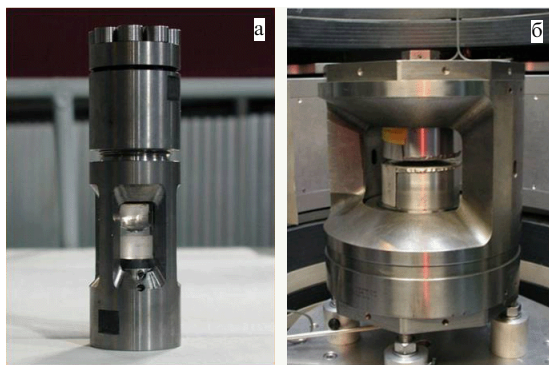
**Рис. 11.** Эволюция нейтронных дифракционных спектров от аккумулятора типа 18650 в ходе нескольких циклов заряда–разряда, выполненных с разной скоростью. Вертикальные полосы — соответствующие материалам анода и катода дифракционные пики, несколько изменяющие свои положение и интенсивность в ходе процесса. В области межплоскостного расстояния  $d \approx 3,5$  Å расположены дифракционные пики от графитового анода, в который при заряде встраивается литий с образованием нескольких промежуточных  $LiC_n$ -фаз и конечной фазы  $LiC_6$  (отдельно расположенный дифракционный пик при  $d \approx 3,7$  Å), соответствующей полному заряду аккумулятора.

лития из катода в анод и обратно, доле материала электродов, вовлечённой в процесс, степени объёмного расширения или сжатия электродов и т.д. Примеры исследований этого типа можно найти в обзоре [57].

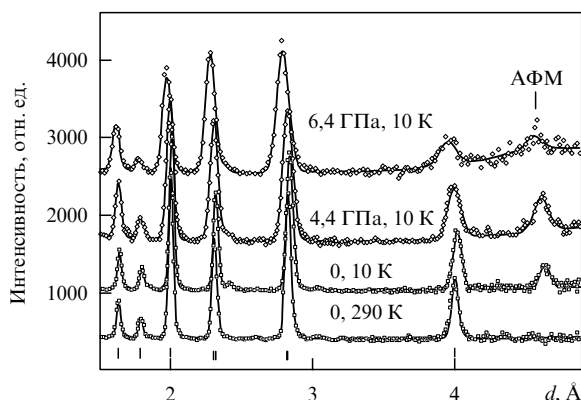
#### 7.4. Исследования атомной и магнитной структуры при высоких давлениях

Как отмечено в разделе 3, TOF-дифрактометр с самого начала его появления рассматривался как особенно перспективный для проведения экспериментов при высоком внешнем давлении, что связано с возможностью работы при фиксированной геометрии рассеяния. Ещё одним важным обстоятельством для таких экспериментов является уже много раз упомянутый широкий диапазон длин волн, позволяющий при фиксированном угле рассеяния охватить большой интервал межплоскостных расстояний и, соответственно, получить достаточно данных для анализа и атомной, и магнитной структур.

В течение длительного времени в нейтронных исследованиях при высоких давлениях использовались камеры (ячейки) типа цилиндр–поршень, позволявшие достигать давления 2–3 ГПа. Однако в 1980-х годах в России в экспериментах начали применять камеры с монокристаллическими, а затем и с тороидальными наковальнями (рис. 12). Первые из них в сочетании с низкофоновой многодетекторной системой регистрации дифракционных спектров [58] позволили изучать образцы объёмом 0,1–10 мм<sup>3</sup> при давлениях до  $\approx 7$  ГПа (в сапфировых наковальнях) и до  $\approx 50$  ГПа (в алмазных наковальнях). В начале 1990-х годов физиками из Парижа и Эдинбурга была разработана камера (получившая название "Париж–Эдинбург-пресс") на основе наковален из карбида вольфрама (WC) с тороидальной геометрией для нейтронных спектрометров [59]. В этой ка-



**Рис. 12.** (а) Камера высокого давления с монокристаллическими наковальнями. Наконьяны из кристаллов сапфира позволяют работать при давлениях до 10 ГПа, наковальни из алмазов — при давлениях вплоть до  $\approx 50$  ГПа. Объём образца  $\approx 5 \text{ мм}^3$  в первом и  $\approx 0,1 \text{ мм}^3$  во втором случаях. Камера с образцом может охлаждаться от комнатной температуры вплоть до температуры в несколько кельвинов. (б) Пресс "Париж–Эдинбург" для работы в диапазоне давлений до  $\approx 30$  ГПа при объёме образца 30–100  $\text{мм}^3$ . Рабочий диапазон температур 90–1000 К. Камеры обоих типов используются на специализированных дифрактометрах DN-6 и DN-12 на реакторе ИБР-2.



**Рис. 13.** Нейтронограммы  $\text{PbFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ , измеренные на DN-12 при нескольких значениях внешнего давления и температуры и обработанные по методу Ритвельда. Видны появление антиферромагнитного (АФМ) пика при низкой температуре, сдвиг пиков в сторону меньших межплоскостных расстояний с возрастанием давления и изменение соотношения интенсивностей магнитного и ядерных пиков.

мере удалось получить давление до  $\approx 30$  ГПа при объёме образца 30–100  $\text{мм}^3$ .

На реакторе ИБР-2 для экспериментов при высоких давлениях используются камеры обоих типов, но особенно эффективно работа ведётся с камерами с сапфировыми и алмазными наковальнями. Для этого созданы два специализированных дифрактометра (DN-6 и DN-12) с многодетекторными системами регистрации. На рисунке 13 показаны типичные нейтронограммы, измеренные на DN-12 в камере с сапфировыми наковальнями на составе  $\text{PbFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$  с релаксорными и мультиферроидными свойствами [60]. Их качество является достаточно хорошим для анализа атомной и магнитной структур относительно простых соединений, каковыми являются перовскитоподобные оксиды. Разрешающая способность дифрактометра не очень высока, около 1 %, но, как правило, дифракционные пики уши-

рены из-за градиента давлений в камере, и это разрешение является оптимальным.

Исследования при высоких давлениях являются одной из наиболее успешных научных тем на реакторе ИБР-2. За сравнительно короткое время проведения таких исследований (DN-12 сдан в эксплуатацию в 1995 г. [61]) выполнено несколько крупных циклов работ по галогенидам аммония, халькогенидам ртути, оксидам марганца и кобальта, мультиферроикам и др. (см., например, [62–64]).

### 7.5. Исследования локального структурного беспорядка

Появление SNS с коротким импульсом позволило существенно продвинуться в дифракционных исследованиях эффектов локального беспорядка в структуре кристаллов. Идея метода, получившего название PDF (Pair Distribution Function technique), состоит в анализе полной функции рассеяния излучения на кристалле, которое включает в себя, помимо когерентных брэгговских пиков, диффузную компоненту. Эта дополнительная к интенсивностям брэгговских пиков компонента появляется, если дальний порядок каким-либо образом нарушается и возникает диффузное рассеяние в виде более или менее плавного распределения интенсивности. Например, в структуре сложного оксида  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$  ионы La и Ca распределены случайным образом по элементарным ячейкам и, соответственно, возникает некогерентное рассеяние с интенсивностью, пропорциональной  $(b_{\text{La}} - b_{\text{Ca}})^2$ , где  $b_{\text{La}}$  и  $b_{\text{Ca}}$  — когерентные длины рассеяния, проявляющиеся в виде постоянного диффузного фона. Более сложно ведёт себя диффузное рассеяние, связанное с искажением формы кислородных октаэдров вокруг ионов марганца в этой структуре. При  $x = 0$  все ионы марганца находятся в состоянии  $\text{Mn}^{3+}$ , что приводит к искажению октаэдров  $\text{MnO}_6$  вследствие эффекта Яна–Теллера. Напротив, при  $x = 1$  все ионы марганца находятся в состоянии  $\text{Mn}^{4+}$  и октаэдры  $\text{MnO}_6$  имеют регулярную форму. В промежуточной ситуации искажённые и регулярные октаэдры случайным образом распределены по объёму, дальний порядок нарушается и возникает диффузное рассеяние, анализ которого позволяет получить информацию об этом локальном беспорядке. Из анализа брэгговских пиков в этом случае можно получить сведения только об усреднённой по объёму структуре.

Математически метод PDF (см. его подробное изложение в монографии [65]) основан на фурье-преобразовании полной интенсивности упруго рассеянных нейтронов  $S(\mathbf{Q})$ ,  $\mathbf{Q}$  — переданный импульс,  $Q = 4\pi \sin \theta / \lambda = 2\pi/d$ , что позволяет получить парную корреляционную функцию:

$$G(\mathbf{r}) = \frac{2}{\pi} \int \mathbf{Q}(S(\mathbf{Q}) - 1) \sin(\mathbf{Q}\mathbf{r}) d\mathbf{Q}, \quad (3)$$

где предполагается, что в  $S(\mathbf{Q})$  внесены поправки, учитывающие фон и другие методические факторы. Предполагается также, что поликристаллический образец рассеивает нейтроны изотропно, это позволяет свести трёхмерное преобразование Фурье  $S(\mathbf{Q})$  в  $G(\mathbf{r})$  к одномерному интегралу по модулю  $\mathbf{Q}$ . В идеальном варианте интеграл в (3) должен вычисляться от нуля до бесконечности, но в действительности существуют эксперимен-

тальные ограничения как по минимальному, так и по максимальному наблюдаемым переданным импульсам. Эти ограничения ("ошибка обрыва") приводят к уширению пикообразного распределения межатомных расстояний  $G(\mathbf{r})$  и появлению модулированного фона.

Из формулы для  $Q$  следует, что для его увеличения необходимо проводить измерение спектра при угле рассеяния, близком к  $180^\circ$ , и использовать нейтроны с малой длиной волны. Практика применения метода PDF показала, что в кристаллах интересные с точки зрения локальных нарушений дальнего порядка эффекты наблюдаются, если  $Q_{\max} \gtrsim 25 \text{ \AA}^{-1}$ . Это означает, что дифракционный спектр должен быть измерен при межплоскостных расстояниях вплоть до  $d \approx 0,2 \text{ \AA}$ . Столь малые межплоскостные расстояния с приемлемыми статистикой и разрешением могут быть измерены только на нейтронных источниках SNS с коротким импульсом, соответственно, метод PDF является одним из немногих, реализация которых практически невозможна на стационарных источниках нейтронов.

Появление необходимой экспериментальной техники на нейтронных и синхротронных источниках и развитие вычислительных методов уже позволили использовать PDF-анализ для решения многих интересных проблем, связанных с наличием локального беспорядка структуры. В частности, было выполнено множество исследований высокотемпературных сверхпроводников и манганитов с колоссальным магнетосопротивлением (colossal magnetoresistance — CMR), в которых локальные нарушения структуры часто играют важную роль в формировании их физических свойств (см. [65]).

### 7.6. Исследования микроstructures кристаллических материалов

С точки зрения дифракции, к микроstructure кристаллических материалов принято относить различного рода несовершенства их структуры, нарушающие идеальный дальний порядок. В микроstructure монокристаллов входят, в частности, величина мозаичности монокристаллов, характерный размер когерентно рассеивающих блоков, наличие двойников, дефектов различного типа и т.д. Для поликристаллов, кроме того, добавляются кристаллографическая текстура и различные внутренние напряжения, приводящие к смещению и уширению дифракционных пиков. Иногда определение характеристик микроstructure всего лишь сопутствует анализу атомной структуры, в других случаях её изучение является необходимым этапом перед структурным анализом. Чаще всего изучение микроstructure относят к так называемым прикладным задачам, типичным примером которых является определение с помощью дифракции внутренних механических напряжений в объёмных материалах, изделиях или деталях машин, обычно интересующих инженеров в связи с прочностью материала и его работоспособностью.

Дифракционные методы анализа микроstructure в первом приближении можно разделить на два типа: анализ некоторых геометрических характеристик дифракционных пиков (положений, ширин) и анализ собственно профилей пиков. Оба подхода реализуются в двух вариантах:

— из дифракционного спектра выделяются отдельные пики, далее проводится их независимый анализ на уровне ширины или профилей;

— проводится анализ сразу всего дифракционного спектра, измеренного в достаточно широком интервале переданных импульсов (межплоскостных расстояний).

В первом случае обычно используется классический подход Вильямсона–Холла, во втором применяются метод Ритвельда [66] и сравнительно недавно появившийся метод, получивший название WPPM (Whole Powder Pattern Modeling) [67]. Примеры определения характерных размеров когерентно рассеивающих доменов и микродеформаций в кристаллитах с помощью метода Вильямсона–Холла рассмотрены в разделе 7.2. В WPPM профили дифракционных пиков, в отличие от таковых в методе Ритвельда, формируются на основе физической модели микроstructure кристаллической среды, в частности, позволяет непосредственно проводить анализ параметров, отвечающих за распределение кристаллитов по размерам. Примеров применения метода WPPM для анализа нейтронограмм пока немного, но, по-видимому, именно его следует рассматривать как наиболее перспективный для получения информации о микроstructure кристаллических материалов.

Метод WPPM основан на известном свойстве фурье-преобразований, а именно если функция  $\rho(x)$  является свёрткой двух других функций,  $\rho_1(x)$  и  $\rho_2(x)$ , то её фурье-образ представляет собой произведение фурье-образов функций  $\rho_1$  и  $\rho_2$ . Выражая сечение рассеяния нейтронов на кристалле  $\sigma(Q)$  как свёртку функций, связанных с эффектами различного рода, искажающими профиль спектра, например, в виде  $\sigma(Q) = \delta(Q) \otimes f_S(Q) \otimes f_D(Q)$ , где  $\otimes$  обозначает операцию свёртки функций,  $\delta(Q)$  — сечение рассеяния на кристалле без дефектов, индексами S и D отмечены функции распределения, относящиеся к описанию эффектов размера и деформаций, получаем

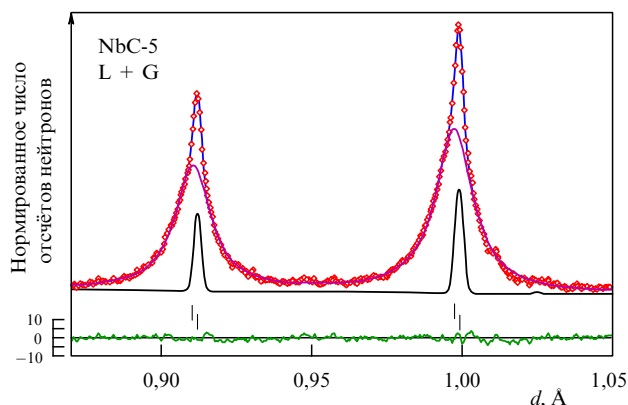
$$F(\sigma) = F(\delta) F(f_S) F(f_D) \quad (4)$$

(F здесь символически означает фурье-преобразование).

Соотношение (4) легко обобщается включением множителей, связанных с функцией разрешения дифрактометра, с наличием границ антифазных доменов, вариацией элементного состава по объёму образца и т.д. Функции распределения  $f_S(Q)$ ,  $f_D(Q)$  и другие рассчитываются на основе предполагаемой модели микроstructure, затем вычисляются их преобразования Фурье и проводится анализ экспериментальных данных на основе уравнения (4). Перечисленные алгоритмы реализованы в программном пакете PM2K [68].

Примером использования метода WPPM для анализа данных, полученных на нейтронных дифрактометрах высокого разрешения, является работа [69]. В этой работе изучались четыре набора порошков карбида ниобия  $\text{NbC}_{0,93}$  с различным средним размером кристаллитов, полученных с помощью высокоэнергетического размола исходного крупнозернистого порошка в течение различного времени:  $\text{NbC-}n$ , где  $n = 0$  (исходный порошок), 1, 5, 10 и 15 — время размола в часах. Нейтронограммы были измерены на TOF-дифрактометре HRFD (ИБР-2) и  $\lambda_0$ -дифрактометре HRPT (PSI). Предварительно экспериментальные данные были обработаны с использованием методов Ритвельда и Вильямсона–Холла. Результаты этой обработки показали, что перемолотые порошки содержат две фракции, F1 и F2, с несколько разными параметрами элементарной ячейки и существенно разными ширинами пиков этих фракций (рис. 14). Кроме



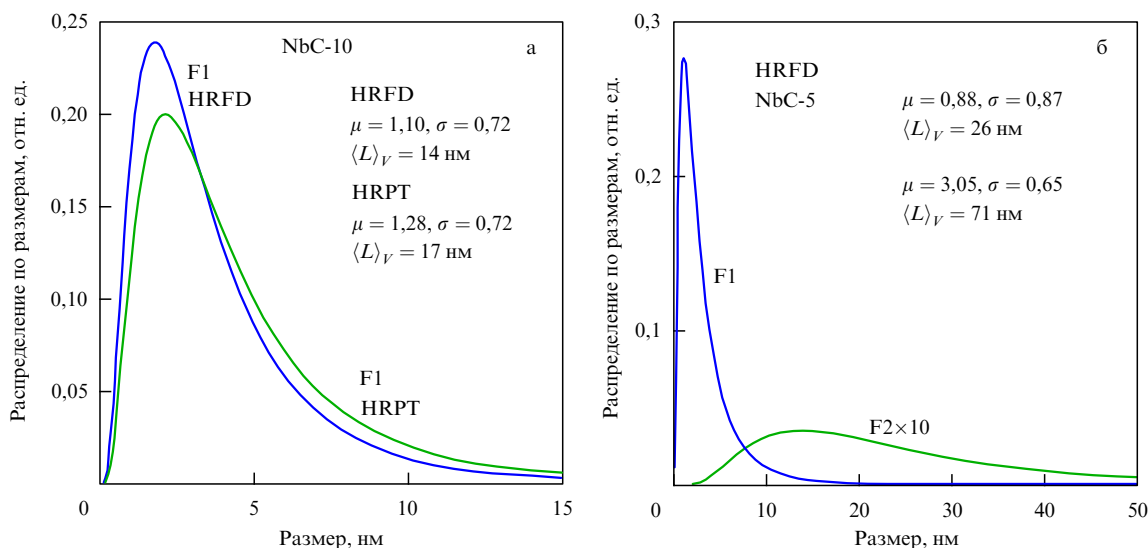


**Рис. 14.** Пики (422) и (420) от образца NbC-5 (5 ч размол) и их описание суммой функций Лоренца (L) и Гаусса (G), положения которых немного различаются. Показаны экспериментальные точки, суммарная кривая и вклады компонент (лоренциан + гауссиан). В нижней части рисунка приведена разностная кривая, нормированная на ошибку в точке. Вертикальные штрихи указывают положения компонент. Ширина лоренциана примерно в четыре раза больше ширины гауссиана, а положение лоренциана смещено в сторону меньших  $d$ . Фактор  $\chi^2$  для этого участка спектра равен 1,71. Попытка описать спектр функцией псевдо-Фойгта (линейная комбинация функций Лоренца и Гаусса с одинаковыми положениями компонент) приводит к  $\chi^2 = 5,31$ .

того, построенные зависимости  $(\Delta d)^2$  от  $d^2$  выявили сильную анизотропию ширин пиков, т.е. их зависимость от конкретного набора индексов Миллера, что не позволило получить достоверные оценки размеров когерентно рассеивающих областей по методу Вильямсона–Холла.

Обработка по методу WPPM нейтронограмм от NbC-10, измеренных на HRFD и HRPT, дала очень близкие результаты для распределения кристаллитов по размерам, которое задавалось в программе в виде логнормального распределения:

$$g(D) = \frac{1}{D\sigma\sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{1}{2} \left( \frac{\ln D - \mu}{\sigma} \right)^2 \right], \quad (5)$$



**Рис. 15.** (а) Логнормальные распределения кристаллитов основной фазы по размерам для NbC-10, рассчитанные по дифракционным данным, полученным на HRFD и HRPT. Соответствующие дифракционные размеры 14 и 17 нм. (б) Логнормальные распределения кристаллитов по размерам для фракций F1 и F2 в NbC-5, рассчитанные по дифракционным данным с HRFD. Параметры распределений соответствуют дифракционным размерам 26 и 71 нм.

где  $D$  — размер кристаллита,  $\mu$  и  $\sigma$  — уточняемые параметры, а усредненный по объёму образца размер кристаллитов, который соответствует размеру, определяемому из ширины дифракционных пиков по методу Вильямсона–Холла, рассчитывался по формуле

$$\langle L \rangle_V = \frac{3}{4} \exp \left( \mu + \frac{7\sigma^2}{2} \right). \quad (6)$$

Рассчитанные распределения по размерам показаны на рис. 15а, из которого видно, что как форма распределений, так и средние размеры кристаллитов (14 и 17 нм) достаточно хорошо согласуются. Из рисунка 15б видно, насколько сильно различаются распределения по размерам фракций F1 и F2 в порошке NbC-5.

Представленный комплексный анализ дифракционных данных позволил выявить важные детали микроструктуры порошков карбида ниобия, образующейся при их перемалывании, и получить для неё объективные численные характеристики. Для их интерпретации предполагалось, что высокоэнергетический размол приводит к неоднородному состоянию получающегося порошка. Основная часть порошка перемалывается эффективно, но некоторая его часть с трудом поддается размолу. Причём из основной части удаляется некоторое количество углерода, что приводит к уменьшению параметров элементарной ячейки.

## 8. Современные источники нейтронов

Основные положения и тенденции в развитии источников нейтронов для исследований на выведенных пучках, изложенные в нашем обзоре [2], сохраняют свою актуальность. Поэтому здесь мы отметим только произошедшие за два последних десятилетия изменения, которые влияют на возможности исследований сегодня и в будущем.

Тип (стационарный или импульсный) генерирующего нейтроны устройства не зависит от типа ядерной реакции. Ядерные реакторы (реакция деления), как правило, являются стационарными, но есть и импульсные. Источ-

ники на основе ускорителей (фотоядерная или "испарительная" (spallation) реакция), как правило, — импульсные, но существуют также источники с квазинепрерывным потоком. Как мы отмечали, для ТОФ-дифрактометрии можно производить импульсные пучки нейтронов и на стационарном источнике. Поэтому дальнейшее рассмотрение мы проводим в рамках устоявшегося деления источников по исходному способу генерации нейтронов: с непрерывным потоком и импульсные.

### 8.1. Источники с непрерывным потоком

Наибольшее число реакторов с непрерывным потоком нейтронов (стационарные реакторы) было создано с 1955 г. по 1960 г. Это были реакторы первого поколения, которые предназначались для наработки изотопов, облучений и радиационных исследований. После 1960 г. началось создание реакторов второго поколения, которые уже предназначались как для радиационных исследований, так и для исследований на нейтронных пучках. Первый реактор с непрерывным потоком третьего поколения, т.е. специальный реактор только для пучковых исследований, был создан в 1965 г. в Брукхейвене (закрыт в 1996 г.) через пять лет после создания пульсирующего реактора ИБР в Дубне, который с самого начала предназначался только для пучковых исследований.

Примерно до 1960 г. увеличение потока нейтронов происходило в той же степени, что и возрастание мощности реакторов, затем дальнейшее увеличение потока нейтронов стало опережать возрастание мощности реакторов. Это опережение особенно проявилось с начала 1970-х годов, когда стали эффективно использоваться реакторы третьего поколения, такие как HFR в Институте Лауэ–Ланжевена (ILL) (Гренобль, Франция), ORE в Лаборатории Леона Бриллюэна (LLB) (Сакле, Франция), ВВР-М (Водо-водяной реактор модернизированный) в Петербургском институте ядерных исследований им. Б.П. Константинова РАН (ПИЯФ РАН) (Гатчина) и исследовательский реактор ИР-8 в Национальном исследовательском центре "Курчатовский институт" (НИЦ КИ) (Москва), ИБР-2 ОИЯИ (Дубна) и др.

В настоящее время в мире работает около 30 исследовательских реакторов, на которых проводятся пучковые исследования. При этом большинство из них — это реакторы, проработавшие более 40 лет, что близко к их естественному времени жизни, т.е. большинство реакторов нуждается в модернизации или замене их новыми.

В конечном счёте эффективность работы исследовательского реактора определяется работой экспериментальных установок (станций). В таблице 2 приведены характеристики наиболее часто упоминаемых в литературе стационарных реакторов третьего и частично второго поколений, используемых для исследований на выведенных пучках. Экспериментальные станции подразделяются согласно общепринятой классификации на пять типов: дифрактометры для упругого брэгговского и упругого диффузного рассеяния, установки для малуглового рассеяния, рефлектометры, спектрометры для неупругого рассеяния и другие приборы. Последние включают в себя всё, что не входит в первые четыре категории. Установки для облучений и активационного анализа здесь не рассматриваются.

Как видно из табл. 2, наиболее эффективными по всем показателям являются HFR среди реакторов высокой

мощности и FRM II среди реакторов средней мощности. HFR имеет наибольший абсолютный и удельный (приведённый к мощности) поток нейтронов и наиболее развитую инфраструктуру для проведения экспериментов. Конструкция FRM II является, по-видимому, оптимальной для реакторов средней мощности.

Кроме технических характеристик весьма существенным показателем является стоимость. Стоимость реактора в значительной мере определяется его средней мощностью, поэтому условной характеристикой, определяющей стоимость производимого нейтрона, можно считать отношение средней мощности к плотности потока. Ещё один фактор — число экспериментальных установок на реакторе; чем оно больше, тем выше эффективность использования реактора или, иными словами, тем дешевле один произведённый нейтрон. Из таблицы 2 видно, что и по этому параметру из всех реакторов выделяются HFR и FRM II.

Ядерные реакторы имеют ограничения с точки зрения их дальнейшего развития с целью получения более высоких выведенных потоков нейтронов, обусловленные технологическими причинами, связанными главным образом с отводом тепла. В этом смысле HFR в Гренобле или строящийся реактор ПИК в Гатчине [70] достигают предела потока выведенных нейтронов для стационарных реакторов —  $(4-5) \times 10^{15} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ .

В целом, несмотря на весьма развившиеся в последние годы средства повышения эффективности использования реакторов — применение новых типов замедлителей, формирование пучков с помощью нейтронных волноводов, установка новых детекторных систем, — современных реакторов как источников нейтронов для физических исследований в мире явно недостаточно.

С целью достижения более высоких потоков в начале 1960-х годов были предложены проекты источников на базе протонных ускорителей (испарительные источники) с непрерывным потоком нейтронов. При этом протонный пучок может быть импульсным, но частота импульсов настолько высока, что поток нейтронов, прошедших через замедлитель, является практически непрерывным.

Источник такого типа создан в Швейцарии, где был использован изохронный циклотрон Института Пауля Шеррера (Виллиген) с током протонов 1,5 мА при энергии 600 МэВ. Начавший работать в конце 1996 г. источник нейтронов SINQ, который проектировался по подобию современных реакторов, имеет поток нейтронов  $10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ , что соответствует потоку большинства современных стационарных реакторов (см. табл. 2).

### 8.2. Импульсные источники

История импульсных источников нейтронов берёт своё начало с 1945 г., со времён Манхэттенского проекта, в рамках которого в Лос-Аламосе был создан импульсный ядерный реактор самогасящего действия, или аperiодический импульсный реактор. Такие сверхмощные импульсные реакторы, которые создавались в рамках специальной тематики, для физических исследований на выведенных пучках не используются, но идея получила развитие. В 1955 г. в г. Обнинске в Физико-энергетическом институте приступили под руководством Д.И. Блохинцева к разработке принципиально нового импульсного реактора периодического действия — пульсирующего реактора. До этого импульсные потоки ней-

Таблица 2. Наиболее часто упоминаемые в литературе источники нейтронов с непрерывным потоком для экспериментов по рассеянию

Реактор*	Месторасположение	Начало работы/ модернизация, год	Мощность, МВт	Поток нейтронов, $10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$	Нейтронные каналы (горизонтальные)	Замедлители (X — холодный, Г — горячий)	Приборы для рассеяния нейтронов					
							Дифрак- ционное	Мало- угловое	Рефлек- торное	Неупру- гое	Другие	Полное число
OPAL	Австралия, Сидней	2007	20	2	10	1 X	4	3	1	4	1	13
WWR	Венгрия, Будапешт	1959/1993	10	2,1	8	1 X	2	3	3	3	3	14
BER II	Германия, Берлин	1973/1991	10	1,2	10	1 X	10	12	1	3	5	16
FRM II	Германия, Мюнхен	2005	20	8	20	1 X, 1 Г	6	4	3	8	2	23+7
Dhruva	Индия, Бомбей	1985	100	2	13	1 X	3	1	1	8	1	14
NRU	Канада, Чок-Ривер	1957	120	3	6	1 X	3	0	1	2	0	6
CARR	Китай, Пекин	2010	60	8	13	1 X	5	2	1	3	5	16
CMRR	Китай, Мьян-Янг	2012	20	2,4	8	1 X	3	2	1	2	3	11
HFR	Нидерланды, Петтен	1961/1970	45	1–24	12	—	3	1	0	2	1	7
ПИК	Россия, Гатчина	2019, план	100	45	16	2 X, 2 Г	5	2	2	—	3	до 50
HFR	США, Ок-Ридж	1966	85	30	4	—	4	1	0	5	0	10
NBSR-NIST	США, Гейтсберг	1969/1985	20	4	24	1 X	2	4	3	7	8	24
HFR ILL	Франция, Гренобль	1975/1995	58	15	26	2 X, 1 Г	14	4	4	4	2	38
Orphée	Франция, Сакле	1980	14	3	20	2 X, 1 Г	11	4	2	5	3	25
LVR-15	Чехословакия, Ржеж	1957/1965	15	1	6	—	1	1	1	1	1	6
SINQ	Швейцария, Виллинг	1996	1	1	14	1 X, 1 Г	5	3	3	5	6	22
JRR-3M	Япония, Токай	1991	20	2	26	1 X	4	1	0	10	5	33

\* Аббревиатуры обозначают: OPAL — Open Pool Australian Light-water reactor, WWR — Water-Water Reactor, BER II — Berlin Experimental Reactor II, FRM II — Forschungsreaktor Munchen II, NRU — National Research Universal, CARR — China Advanced Research Reactor, CMRR — China Mianyang Research Reactor, HFR — High Flux Reactor, ПИК — Пучковый исследовательский корпусной реактор, HFR — High Flux Isotope Reactor, NBSR-NIST — Neutron Beam Split-core Reactor at the National Institute of Standards and Technology, HFR ILL — High Flux Reactor at ILL, LVR — Легководной исследовательский реактор (от чешского Lehkovodni výzkumný reaktor), JRR-3M — Japan Research Reactor 3M. Расшифровка остальных аббревиатур дана выше в тексте.

тронов для ядерной спектроскопии создавались с помощью прерывателя пучка (прерыватель Ферми [11]) на стационарных реакторах. Эффективность использования реактора, которая и без того была невысока, при этом сильно уменьшалась. Пульсирующий реактор мог решить эту проблему.

Пульсирующий реактор ИБР, который начал сооружаться в Дубне в 1957 г., был введён в эксплуатацию в 1960 г. Это был первый в мире реактор, в котором импульсы генерировались периодически с частотой 5 и 50 Гц благодаря вращению части активной зоны. При средней мощности реактора всего 1 кВт поток нейтронов был выше, чем на стационарных реакторах мощностью в 10 МВт с прерывателем.

Успешная работа реактора ИБР и его модификаций стимулировала дальнейшее развитие этого направления. В середине 1960-х годов появилось несколько новых проектов. Из всех предложений новых высокопоточных пульсирующих реакторов был реализован только проект реактора ИБР-2, что стало возможным благодаря опыту работ с такими системами в Дубне и Обнинске. Принципиальным отличием ИБР-2 от серии первых реакторов ИБР стали модуляция реактивности подвижным отражателем, а также охлаждение активной зоны жидким натрием.

Пульсирующий реактор ИБР-2, введённый в эксплуатацию в 1984 г., имел самый высокий в мире импульсный поток тепловых нейтронов —  $10^{16} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ . Кроме того, это исключительно экономичная установка — время эксплуатации активной зоны реактора около 20 лет. Особенностью реактора ИБР-2 является сравнительно большая длительность нейтронного импульса: более 300 мкс для тепловых нейтронов.

Первый импульсный источник на ускорителях был создан в начале 1950-х годов в Харуэлле с использованием линейного электронного ускорителя, здесь же в 1959 г. была предложена и реализована идея бустера: системы ускоритель–размножающая мишень. Размножающая мишень представляет собой мишень из тяжёлого металла, помещённую в подкритическую сборку. Фотоядерные нейтроны инициируют цепную реакцию в сборке, что приводит к увеличению потока нейтронов в 10–30 раз. Цепная реакция в подкритической сборке идёт только при работающем ускорителе, в этом заключается принципиальное отличие такой системы от реактора. Бустер ИБР-30 работал в Дубне до 2006 г. В настоящее время на его месте создан новый фотоядерный источник ИРЕН (Источник резонансных нейтронов) (без размножения), который находится в стадии развития.

Хотя линейные электронные ускорители относительно просты в изготовлении, в настоящее время они используются мало (из-за низкой эффективности) и в основном для ядерной физики. Бустеры тоже не имеют широкого распространения. Главная проблема состоит в том, что общественность настроена против любых систем, содержащих делящиеся материалы. Однако логика развития источников нейтронов, по-видимому, приведёт к широкому использованию именно бустеров.

Протонные ускорители для импульсных источников нейтронов начали использоваться в начале 1970-х годов. В 1973 и 1975 гг. были сконструированы прототипы ZING (Zero gradient synchrotron Intense Neutron Generator) и ZING-P' в Аргоннской национальной лаборато-

рии, а впоследствии там же с 1981 г. по 2008 г. работал источник IPNS (Intense Pulsed Neutron Source). Аналогичные установки были сделаны в Лос-Аламосе в 1977 г., где с 1985 г. работает мощный источник LANSCE (Los Alamos Neutron Science Center), недавно переименованный в LNSC (Lujan Neutron Scattering Center). В 1980 г. вступил в действие источник KENS (работал до 2009 г.) в Национальной лаборатории высоких энергий (КЕК) в Японии. Все эти источники нейтронов первого поколения создавались на ускорителях, предназначенных для ядерной физики.

Первый импульсный протонный источник нейтронов второго поколения, для которого главный ускоритель был построен специально, — ISIS, начавший работать в 1985 г. в Лаборатории Резерфорда–Эплтона (Великобритания). В настоящее время ISIS — интенсивный, наиболее хорошо оборудованный и приспособленный для использования импульсный источник нейтронов. В 2006 и 2009 гг. были приняты в эксплуатацию протонные источники нейтронов в США (SNS) и Японии (J-SNS) соответственно. Это самые мощные и самые интенсивные (в импульсе) источники нейтронов третьего поколения, с которыми может конкурировать только ИБР-2. Несомненно, именно такие источники имеют наилучшие перспективы развития.

Перечисленные протонные источники нейтронов относятся к классу импульсных источников с малой длительностью нейтронного импульса — источники с коротким ( $< 50$  мкс) импульсом (Short Pulse Source — SPS). В последнее время весьма активно обсуждается вопрос о создании источников с длинным ( $> 300$  мкс) импульсом (Long Pulse Source — LPS). Дело в том, что создание протонных накопителей с энергией в несколько ГэВ, необходимых для повышения потока нейтронов, весьма дорого. Гораздо дешевле построить мощный линейный протонный ускоритель, но длительность нейтронного импульса при этом увеличивается. Длительность импульса определяет разрешающую способность экспериментальной установки: при стандартном подходе чем меньше длительность импульса, тем лучше разрешение. Однако развитие техники эксперимента на первом LPS — реакторе ИБР-2 — показывает, что при длинном импульсе с использованием современной электроники и математического обеспечения возможно формирование нейтронных импульсов с необходимой длительностью, что позволяет получить разрешение на уровне разрешения лучших SPS как для упругого, так и для неупругого рассеяния. Но при этом поток нейтронов возрастёт на порядок. Этот опыт использован при конструировании LPS на протонных ускорителях. Источник такого типа начал работать в 1999 г. на линейном ускорителе Московской мезонной фабрики.

В настоящее время в Швеции (Лунд) сооружается самый мощный LPS-протонный источник нейтронов — Европейский испарительный источник (European Spallation Source — ESS) следующего поколения со средней мощностью 5 МВт, т.е. в 30 раз большей, чем мощность ISIS.

В таблице 3 приведены получившие международное признание интенсивные импульсные источники нейтронов, используемые для исследований конденсированных сред.

ESS будет самым интенсивным импульсным источником нейтронов. При этом его средняя по времени ин-

Таблица 3. Импульсные источники нейтронов для экспериментов по рассеянию, получившие международное признание

Источник, год создания/ модернизации	Страна, место-расположение	Мощность мишени, МВт	Поток нейтронов импульсный, $10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$	Длительность импульсов тепловых нейтронов, мкс; частота, $\text{с}^{-1}$	Нейтронные каналы	Холодные замедлители	Станции для рассеяния нейтронов					
							Дифракционное	Малоугловое	Рефлекторное	Неупругое	Другое	Полное число
Источники с коротким импульсом												
ISIS I, 1985 ISIS II, 2009	Великобритания, Чилтон	0,2	10 45	20–30; 50 20–30; 5	16 13	2 1	10 6	2 4	3 5	7 2	1 2	21 20
MLNSC*, 1985 SNS, 2006	США, Лос-Аламос Ок-Ридж	0,1 1	7 100	20–30; 20 20–30; 60	16 14	2 1	4 7	2 2	3 2	2 7	2 3	13 21
JSNS**, 2009	Япония, Ибаракы	1	100	20–30; 25	21	1	7	1	2	3	7	20
CSNS***, 2018, план	Китай, Донгуан	0,1	50	20–30; 25	20							20
Источники с длинным импульсом												
ИБР-2, 1984/2012	Россия, Дубна	2	200	360; 5	14	2	6	1	3	2	2	14
ESS, 2019, план	Швеция, Лунд	5	400	2000								20 после 2025

\* Manuel Lujan Neutron Scattering Center.

\*\* Japan Spallation Neutron Source.

\*\*\* China Spallation Neutron Source.

Таблица 4. Перспективные источники нейтронов в европейской стратегии развития

Источник	Начало эксплуатации, год	Тепловая энергия, МВт	Средний поток нейтронов, см <sup>-2</sup> с <sup>-1</sup>	Пиковый поток нейтронов, см <sup>-2</sup> с <sup>-1</sup>	Число дней работы в год	Число станций	Возможное число станций	Число пользователей в год	Эксплуатационные расходы, 10 <sup>6</sup> евро
FRM II, Мюнхен	2005	20	$8 \times 10^{14}$		240	23 в работе, 7 создаются	35	1000	55
BER II, Берлин	1991	10	$1,2 \times 10^{14}$		220	16 в работе	20	400	25
ILL, Гренобль	1975/1995	58	$1,3 \times 10^{15}$		200	27 + 10 CRG*	> 40	1400	80 + CRG
ESS, Лунд	2019, план	5, LP		$4 \times 10^{16}$	200	20 после 2025 г.	> 20		103
ПИК, Гатчина	2019, план	100	$5 \times 10^{15}$		200	22 после 2022 г.	> 40		30
LLB, Сакле	1985	14	$3 \times 10^{14}$		200	22	25	600	25
SINQ, Виллиген	1996	1	$1,5 \times 10^{14}$		200	15	20	600	30
ISIS/ ISIS-II, Абингтон	1985/2009	0,2, SP		$4,5 \times 10^{15}$	180	34	41	1500	55
ИБР-2, Дубна	1984/2012	2, LP		$2 \times 10^{16}$	108	14	14	200	1
WWR, Будапешт	1959/1993	10	$2,1 \times 10^{14}$		140	14	14	100	10

\* CRG — аббр. от Collaborative Research Group instruments.

тенсивность (плотность потока нейтронов) будет сравнима с таковой у HFR в ILL.

Для проведения экспериментов по рассеянию основной характеристикой источника является средний поток нейтронов, который определяет не только скорость проведения экспериментов, но и возможности увеличения точности измерений, изучения объектов малых размеров, сложных объектов и объектов с малым сечением рассеяния, проведения экспериментов с анализом поляризации нейтронов до и после рассеяния. Как видно из сравнения табл. 2 и 3, по этой характеристике существующие импульсные источники нейтронов уступают стационарным реакторам.

Однако, как показывает анализ условий проведения экспериментов по рассеянию на источниках с непрерывным потоком и на импульсных источниках, для идеально сконструированных приборов, требующих монохроматизации нейтронного пучка, средний по времени поток на импульсном источнике эквивалентен пиковому потоку. Это означает, что даже на существующих импульсных источниках условия для проведения экспериментов могут быть лучше, чем на стационарном реакторе.

### 8.3. Европейская стратегия развития

В таблице 4 приведено десять источников нейтронов, отнесённых Европейской ассоциацией по рассеянию нейтронов (European Neutron Scattering Association — ENSA) к числу наиболее перспективных. На этих источниках наиболее развита система пользователей и получены основные научные результаты.

По двум источникам из этих десяти приняты принципиальные решения по их выводу из эксплуатации: в 2019 г. — LLB, в 2020 г. — BER II. Обсуждается вопрос об

окончании работы реактора в ILL. Анализ, проведённый ENSA, показывает, что число дней работы источников нейтронов для пользователей в Европе с 2007 до 2027 г. уменьшится от 32000 до 20000. В настоящее время основной вклад дают (в порядке убывания) HFR-ILL, FRM II, Orphée, ISIS, BER-II, SINQ. При этом потребности в нейтронах не убывают, а значит, необходимость в таких источниках, как ESS и ПИК, возрастает.

Для нас наибольший интерес представляет позиция ФРГ как стратегического партнёра в создании Международного центра нейтронов на базе строящегося в НИЦ КИ в Гатчине (Ленинградская обл.) высокопоточного реактора ПИК [70].

Нейтронная стратегия ФРГ основана на выводе из эксплуатации старых реакторов, несмотря на то что они являются хорошо оснащёнными и успешными, и замене их, хотя и одним, но современным с новыми экспериментальными станциями и активном участии в передовых европейских проектах. Эта стратегия, которая последовательно проводится в течение последних 20 лет, направлена на регулярное техническое перевооружение, что обеспечивает постоянное технологическое развитие. Такая стратегия во всех областях науки в результате интегрируется в высокий уровень экономики страны.

В начале 2000-х годов был закрыт реактор FRM I в Гархинге (ФРГ), который работал с 1957 г. На той же площадке в 2005 г. начал работать реактор FRM II — в настоящее время хорошо оснащённый нейтронный центр, европейский лидер и единственный в ФРГ реактор, который сохранится до 2040-х годов. В 2006 г. был закрыт реактор FRJ-II в Юлихе. Нейтронные исследования были перенесены в Гархинг, где в 2006 г. на реакторе FRM II был открыт в специально возведённом отдель-

ном корпусе Юлихский центр нейтронных исследований, который построил больше половины нейтронных станций. В настоящее время на FRM II функционирует созданный Техническим университетом Мюнхена и Юлихским центром передовой нейтронный центр (Центр Майера – Лейбница).

В Юлихе планируется создать компактный источник нейтронов HBS (High Brilliance neutron Source) на основе линейного ускорителя для методических работ и подготовки студентов. Отсутствие таких источников нейтронов университетского типа является одной из причин слабой распространённости нейтронных методов по сравнению с синхротронными. Источники фотонов, в частности рентгеновские, имеются в огромных количествах, что немало способствует формированию широкого круга пользователей источников синхротронного излучения.

В 2010 г. был закрыт реактор FRG-I в Геестакте (Гамбург), который работал с 1958 г., нейтронная тематика была перенесена на другие источники (в том числе на реактор ПИК) и активно начала развиваться синхротронная тематика на внешних источниках. Наконец, в 2020 г. планируется закрыть реактор BER II в Научном центре им. Гельмгольца в Берлине. Хотя этот нейтронный центр прекрасно оснащён и создаются новые экспериментальные станции, нейтронная тематика в нём будет закрыта, и он полностью переориентируется на источник синхротронного излучения BESSY<sup>8</sup> II.

ФРГ является одним из основателей (вместе с Францией) Европейского центра нейтронных исследований ILL, который сыграл важную роль в развитии нейтронных исследований в Германии. Исключительно важную роль он играл и для России в период её участия в ILL в качестве научного члена с 1997 г. по 2007 г. Реактор HFR ILL будет работать ориентировочно до 2023 г., поэтому ФРГ активно участвует в создании двух новых источников — ESS и ПИК. Определяющими факторами являются рекордно высокие нейтронные потоки и возможность развития международной кооперации. Последний фактор играет важную роль не только ввиду большой стоимости работ на мегаустановках, но и даже в большей степени из-за всё возрастающей необходимости кооперации в науке.

Источники ESS и ПИК могут быть очень хорошими партнёрами в будущем. Эти два источника являются абсолютно взаимодополняющими. Нейтронное сообщество ожидает, что будут созданы отвечающие современным тенденциям развития науки экспериментальные станции, системы обработки данных, системы окружения образца. Реактор ПИК имеет свою нишу как источник с непрерывным потоком. Поскольку в принципе он может заменить HFR, его экспериментальные станции должны быть уже следующего поколения. Весь путь нейтронов от реактора до образца необходимо оснастить для эффективного использования реактора: должны быть установлены лучшие замедлители, нейтронводы и другие оптические элементы для уменьшения фона и увеличения разрешения, а также широко использоваться поляризованные нейтроны. Современное развитие детекторных технологий и электроники позволяет существ-

венно повысить сбор и улучшить обработку экспериментальных данных.

Европейское сообщество накопило большой опыт международной кооперации, в том числе при подготовке обоснования и разработке концепции приборной базы ESS, и готово передать его России при создании Международного центра нейтронных исследований на базе реактора ПИК.

#### 8.4. Источники нейтронов в России

На фоне мирового развития положение России выглядит сегодня весьма скромным. Новые нейтронные источники для исследований на выведенных пучках не создавались на протяжении последних 30 лет. Исключение составляет единственный современный источник на территории России — импульсный реактор ИБР-2 в Международной межправительственной организации — Объединённом институте ядерных исследований (Дубна) с потоком нейтронов с поверхности замедлителя  $2 \times 10^{16} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$ .

Имеется несколько низко- и среднепоточных источников нейтронов, на которых с разной степенью активности проводятся исследования вещества на выведенных пучках. Это реакторы с непрерывным потоком в НИЦ КИ (Москва), ПИЯФ НИЦ КИ (Гатчина, Ленинградская область), Институте реакторных материалов (ИРМ, Заречный, Свердловская область), Национальном исследовательском Томском политехническом университете (НИ ТПУ), Национальном исследовательском ядерном университете "Московский инженерно-физический институт" (НИЯУ МИФИ), Обнинском филиале Института физической химии им. Л.Я. Карпова (НИФХИ, Обнинск), а также импульсные источники ГНЕЙС (Гатчинский нейтронный спектрометр) на базе протонного синхротрона (ПИЯФ НИЦ КИ), ИН-06 (тепловые нейтроны) и РАДЭКС (Радиационный эксперимент) (эпитепловые и тепловые нейтроны) на базе протонного линейного ускорителя в Институте ядерных исследований РАН (ИЯИ РАН, Троицк, Москва). Два импульсных источника, ИБР-2 и ИРЕН, работают в ОИЯИ. В таблице 5 приведены сравнительные характеристики источников нейтронов в России. Реактор ИБР-2 представлен в табл. 3 и 4.

Рассмотрим более подробно источники, на которых проводятся исследования на выведенных пучках.

Реактор ИР-8 (НИЦ КИ) начал работать в 1981 г. после реконструкции реактора ИРТ (Исследовательский реактор *типовой*), построенного в 1957 г. Проектная мощность 8 МВт, имеется 12 горизонтальных и 18 вертикальных каналов. Большинство станций находится в стадии реконструкции. В рабочем состоянии находятся три дифрактометра для структурных исследований и пять станций для ядерно-физических исследований. Имеется проект реконструкции и строительства нейтронного зала. Активно используется облучательная база на вертикальных каналах, которая позволяет проводить большой объём облучения конструкционных материалов, осуществлять исследования топливных элементов ВВЭР (Водо-водяной энергетический реактор), а также исследования по разработке методов и технологий получения радиоизотопов для медицинских целей.

В НИЦ КИ в 2007 г. была разработана концепция проекта создания Специализированного нейтронного центра на базе реактора ИР-8. В 2007–2012 гг. была произведена модернизация некоторых систем реактора

<sup>8</sup> От нем. Berliner Elektronenspeicherring-Gesellschaft für Synchrotronstrahlung — Берлинское сообщество электронного накопительного кольца для синхротронного излучения.

**Таблица 5.** Характеристики нейтронных источников России для исследований на выведенных пучках (характеристики реактора ИБР-2 приведены в табл. 3, 4)

Название установки	Организация	Год пуска	Мощность, МВт	Поток нейтронов, $10^{14} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$	Число станций
Реактор ИР-8	НИЦ КИ, Москва	1957/1981/2012	2/5/8	1	4 + 5
Реактор ВВР-М	ПИЯФ НИЦ КИ, Гатчина	1959/1978 Длительный останов с 2016 г.	5/18	4,5	12
Реактор ВВР-ц	Филиал НИФХИ, Обнинск	1964	13	1	3
Реактор ИВВ-2М	ИРМ, Заречный	1966/1983	15	2	5
Реактор ИРТ-Т	НИ ТПУ, Томск	1967/1977	6	1,2	—
Реактор ИРТ	НИЯУ МИФИ, Москва	1967/1975 Длительный останов с 2013 г.	2,5	0,3	4
ГНЕЙС (импульсный) $\Delta t_0 = 10 \text{ нс}$	ПИЯФ НИЦ КИ, Гатчина	1973/1983	$3 \times 10^{-3}$	1	3
Источники ИН-06 (импульсный) $\Delta t_0 = 100 - 200 \text{ мкс}$	ИЯИ РАН, Троицк	1999	$3 \times 10^{-1}$	1	7 + 2
ИРЕН (импульсный) $\Delta t_0 = 30 \text{ нс}$	ОИЯИ, Дубна	2010	$4 \times 10^{-3}$	0,1	3
Реактор ПИК	ПИЯФ НИЦ КИ, Гатчина	2019, план	100	45	22 после 2022 г.

и реактор был выведен на проектную мощность 8 МВт. Предусматриваются разработка и создание источника холодных нейтронов, суперзеркальных нейтронпроводов (существуют проект и предложение на конструирование и изготовление в ПИЯФ НИЦ КИ) и трёх экспериментальных станций: станции малоуглового рассеяния и дифрактометра для исследования микрообразцов при высоких давлениях (имеются проект и предложение на конструирование и изготовление ОИЯИ) и рефлектометра поляризованных нейтронов (имеются проект и предложение на конструирование и изготовление ПИЯФ НИЦ КИ, Гатчина).

Работу по строительству холодного источника и нейтронного зала планируется провести в 2015–2017 гг.

*Реактор ВВР-М* (ПИЯФ НИЦ КИ) был создан в конце 1959 г. по стандартному проекту Института атомной энергии им. И.В. Курчатова на мощность 2 МВт. Проект сразу был переработан физиками ПИЯФ на мощность до 10 МВт. Реактор начал работать в 1960 г. на мощности 5 МВт, а в 1961 г. — на мощности 10 МВт. Выход на мощность 18 МВт происходил постепенно и был завершён в 1967 г.

На реакторе проводятся исследования в области физики конденсированного состояния, радиационного материаловедения, радиобиологии, а также ядерной физики и смежных научных направлений.

Реактор оснащён 15 специализированными установками для проведения исследований наносистем и материалов.

С 2016 г. по экономическим причинам реактор ВВР-М переводится в режим длительного останова. Исследовательская программа будет формироваться с учётом возможностей реакторов ИБР-2 и ИР-8.

*Реактор ВВР-ц* (Обнинский филиал НИФХИ) имеет 22 вертикальных и 9 горизонтальных каналов, из которых используются пять. Вертикальные каналы активно используются для ядерного легирования, радиационного модифицирования материалов, получения протонов; создаётся комплекс нейтронной терапии для онкологических больных. На горизонтальных каналах было установлено три дифрактометра, которые в настоящее время не используются.

*Реактор ИВВ-2М* (Исследовательский водо-водяной ядерный реактор) (Институт реакторных материалов Росатома). На базе реактора ИВВ-2М, оборудованного комплексом из пяти экспериментальных станций, созданных физиками Института физики металлов УрО РАН (ИФМ УрО РАН), работает нейтронный материаловедческий центр, имеющий четыре дифрактометра и одну малоугловую установку.

На реакторе исследуется широкий круг задач радиационного материаловедения, радиационной физики, конденсированного состояния, магнетизма и сверхпроводимости. Уникальные возможности осуществления низкотемпературного нейтронного облучения позволяют проводить передовые исследования влияния радиационного разупорядочения на структурные характеристики и физико-механические свойства конструкционных материалов — сталей, сплавов и др., применяемых в реакторостроении.

Реактор ИВВ-2М является единственным в России, на котором нейтронографическими методами исследуются высокорadioактивные материалы, в том числе функциональные для использования в промышленности.

*Реактор ИРТ-Т* (НИ ТПУ) хорошо оснащён для радиационной физики, получения изотопов, активационного анализа. Используется для подготовки специали-



стов по реакторной тематике. Приборов для рассеяния на выведенных пучках нет.

*Реактор ИРТ* (НИУ МИФИ). Имеется четыре установки на горизонтальных каналах. С 2013 г. находится в режиме длительного останова.

*ГНЕЙС* — Гатчинский нейтронный времяпролётный спектрометр (ПИЯФ НИЦ КИ) на базе протонного синхротрона СЦ-1000. Ускоритель принят в эксплуатацию в 1971 г. ГНЕЙС — импульсный источник нейтронов испарительного типа, созданный в 1973 г. Энергия протонов 1 ГэВ, ток внутреннего пучка менее 3 мкА, нейтронная мишень — охлаждаемый водой свинцовый блок размерами  $40 \times 20 \times 5$  см, полиэтиленовый замедлитель, длительность импульса  $\approx 10$  нс, частота повторения импульсов до 50 Гц, средняя интенсивность быстрых нейтронов около  $3 \times 10^{14}$  с<sup>-1</sup>. От мишени отходят пять каналов (один "смотрит" на мишень, остальные ориентированы на замедлитель).

Научная программа основана на времяпролётной спектрометрии высокого разрешения в нейтронной ядерной физике и физике деления. Кроме того, имеется единственный в России пучок нейтронов с атмосферным спектрометром для тестирования электроники летательных аппаратов.

*Протонный ускоритель ИЯИ РАН (источники ИН-06 и РАДЭКС)* может рассматриваться как база для создания в будущем мощного испарительного источника (см. раздел 8.3). В настоящее время имеется семь установок на выведенных пучках. Параметры работы ускорителя (энергия протонов 209 МэВ, средний ток 50 мкА и время работы на нейтронный комплекс менее 300 ч в год) пока не позволяют эффективно использовать эти установки.

При модернизации сильноточного линейного ускорителя протонов на основе частичной замены ускоряющей структуры сверхпроводящими резонаторами, повышения конечной энергии протонов до  $\approx 1$  ГэВ и замены мишени жидкометаллическим источником нейтронов ИН-06 мог бы по своим параметрам приблизиться к нейтронным комплексам США, Японии и Европы.

*Реактор ИБР-2* (ОИЯИ), принятый в эксплуатацию в 1984 г., после модернизации с 2006 г. по 2012 г. обладает наибольшим в мире импульсным потоком нейтронов, достижимым на исследовательских источниках нейтронов ( $2 \times 10^{16}$  см<sup>-2</sup> с<sup>-1</sup>), и является единственным в России современным источником нейтронов мирового класса для исследований на выведенных пучках.

В результате модернизации ИБР-2 фактически создан новый реактор, который имеет в два раза больший поток тепловых нейтронов, более долговечный (в 2,5 раза) ресурс подвижного отражателя, втулочные твэлы с увеличенной глубиной допустимого выгорания, усовершенствованную систему аварийной защиты и новый современный комплекс замедлителей (тёплых и криогенных). Новый комплекс холодных замедлителей на ИБР-2 позволяет повысить эффективность использования нейтронов в ряде экспериментов на выведенных пучках в 20–30 раз. Это в свою очередь открывает возможности для создания мощной спектрометрической базы для проведения исследований по физике конденсированного состояния. Средняя плотность потока холодных нейтронов на поверхности каждого из криогенных замедлителей составит не менее  $9 \times 10^{12}$  см<sup>-2</sup> с<sup>-1</sup> (примерно столько же, сколько будет давать холодный замедлитель "второй" мишени источника ISIS, который афиши-

руется как рекордный). Всё это позволит новому реактору ИБР-2 сохранять до 2037 г. лидирующие позиции среди нейтронных источников в мире.

На ИБР-2 учёными из России и других стран ежегодно проводится более 200 экспериментов. Организована система пользователей по европейскому стандарту. В настоящее время на ИБР-2 функционирует 14 спектрометров мирового класса, позволяющих эффективно решать поставленные задачи.

Опыт эксплуатации ИБР-2 показывает, что ИБР-2 представляет собой весьма эффективный источник нейтронов, в большинстве областей применений не уступающий лучшим источникам на базе протонных ускорителей. Этот опыт особенно актуален в настоящее время, когда наблюдается всё возрастающий интерес к импульсным источникам нейтронов с большой длительностью импульса.

Срок работы модернизированного реактора ИБР-2 установлен до 2032–2037 гг., но уже сегодня рассматриваются варианты его дальнейшего развития. Нам представляется весьма перспективным проект импульсного бустера на базе линейного протонного ускорителя. Создание ускорителя с необходимыми параметрами: энергия протонов около 1 ГэВ, средний ток пучка 1 мА, длительность импульса порядка 100 мкс, длина ускорителя до 200 м — в настоящее время является решаемой задачей. В качестве размножающей мишени может быть использовано устройство типа ИБР-2 в существующем здании. Такая мишень позволит увеличить поток нейтронов в 10–100 раз по сравнению с таковым в ESS.

*Источник резонансных нейтронов (ИРЕН) (ОИЯИ)* — базовая установка нового поколения для решения широкого спектра задач фундаментальной и прикладной ядерной физики. Установка ИРЕН предназначена для ядерно-физических исследований с использованием времяпролётного метода в области энергий нейтронов до нескольких сотен кэВ, исследований фотоядерных реакций.

В состав полномасштабного научно-исследовательского комплекса ИРЕН входят линейный ускоритель электронов на энергию до 200 МэВ с мощностью пучка 10 кВт, глубоко подкритическая размножающая мишень, пучковая инфраструктура с измерительными павильонами, а также технологические, управляющие, защитные и обеспечивающие системы. Характеристики полномасштабного комплекса ИРЕН выведут эту установку в один ряд с лучшими источниками нейтронов этого класса (GELINA (Geel Electron LINear Accelerator) (Бельгия) и ORELA (Oak Ridge Electron Linear Accelerator) (США)).

*Реакторный комплекс ПИК*. Исследовательский реактор ПИК создаётся в ПИЯФ НИЦ КИ. По конструкции, физическим и техническим характеристикам он остаётся непревзойдённым в реакторостроении для экспериментальных целей и после пуска станет уникальной базой научных исследований. Описание необходимых работ и план завершения сооружения реактора ПИК представлены в [70].

Реактор ПИК мощностью 100 МВт и потоком тепловых нейтронов  $5 \times 10^{15}$  см<sup>-2</sup> с<sup>-1</sup> со своими экспериментальными установками может стать международным центром нейтронных исследований в России, основой чему служат высокий научный профессионализм коллектива ПИЯФ НИЦ КИ и наличие опыта организации

работы пользователей нейтронных пучков. Число позиций для экспериментальных установок на пучках в залах реактора может быть более 40.

## 9. Заключение

За прошедшие 50 лет дифракция нейтронов на импульсных источниках прошла впечатляющий путь развития, начало которому было положено работами Ф.Л. Шапино, его учеников и сотрудников. Резко — от нескольких киловатт до нескольких мегаватт — увеличилась средняя мощность источников, радикально изменилась техника формирования нейтронных пучков и детекторных систем, развиты эффективные методы обработки дифракционных данных. Многократно расширилась научная тематика, которая в настоящее время включает в себя все направления, развитые на  $\lambda_0$ -дифрактометрах, и некоторые дополнительные.

Что касается Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ, где начиналась история TOF-дифрактометров, то ситуация в ней отражает общемировую. В созданном на реакторе ИБР-2 комплексе из 14 нейтронных спектрометров дифрактометры составляют половину. Из научных задач, перечисленных в табл. 1, на ИБР-2 не развивается только тема локальных искажений структуры. Некоторые дифрактометры (HRFD, DN-6, RTD (Real-Time Diffractometer), SKAT (Спектрометр для количественного анализа текстуры)) обладают характеристиками на уровне лучших мировых. На сайте ЛНФ ОИЯИ (<http://lnp.jinr.ru>) можно найти подробные сведения обо всех спектрометрах, действующих на ИБР-2 в настоящее время. Их дальнейшее совершенствование будет связано с улучшением уже существующей экспериментальной техники: нейтроно-оптических устройств, детекторов, систем регистрации. Особенно большие перспективы имеются в развитии фурье-дифрактометрии, нейтронографии в реальном времени, дифракции на микрообразцах при высоких давлениях.

Общее число TOF-дифрактометров в мире сравнительно невелико, и это соответствует тому, что в настоящее время действуют всего пять современных импульсных источников, тем не менее выполняемые на них исследования очень заметны в общем потоке нейтронных дифракционных работ. Прежде всего это связано с отмеченными в разделе 3 некоторыми их специфическими возможностями, позволяющими осуществлять эксперименты, проведение которых на  $\lambda_0$ -дифрактометрах затруднено или даже недоступно. Наиболее важными из них являются возможность почти непрерывного трёхмерного сканирования обратного пространства и работы при очень малых длинах волн. Последнее связано с особенностями спектрального распределения нейтронов на протонных источниках нейтронов, в котором в большом количестве присутствуют эпитепловые нейтроны. Например, если на стационарных реакторах на пучках тепловых нейтронов минимальная длина волны  $\approx 0,9 \text{ \AA}$ , а при наличии "горячего" источника её можно уменьшить до  $\approx 0,4 \text{ \AA}$ , то на протонных источниках нейтронов вполне доступны длины волн  $\approx 0,2 \text{ \AA}$ , т.е. переданные импульсы до  $Q \approx 60 \text{ \AA}^{-1}$ . Ещё одним важным обстоятельством является слабая зависимость функции разрешения TOF-дифрактометра от межплоскостного расстояния, очень помогающая при анализе малых изменений параметров и симметрии

элементарной ячейки при структурных фазовых переходах.

Большинство TOF-дифрактометров по основным характеристикам — разрешению, светосиле, диапазону межплоскостных расстояний — не уступает лучшим  $\lambda_0$ -дифрактометрам. Так же как стационарные и импульсные источники, нейтронные дифрактометры двух типов следует рассматривать скорее как взаимодополняющие, чем альтернативные. Принципиально разная постановка эксперимента приводит к тому, что исследование одного и того же объекта на  $\lambda_0$ - и TOF-дифрактометрах с близкими светосилой и разрешением даёт несколько различную информацию. Основными причинами различий являются, как правило, разный интервал по переданному импульсу, различное соотношение эффекта и фона на разных участках спектра, различие в поправках, вводимых в интенсивности при переходе к структурным факторам и т.д. Например, дифрактометр на стационарном источнике обычно обеспечивает большую прецизионность структурных данных: длин связей, валентных углов, величин магнитных моментов. Однако аккуратное определение структуры на локальном уровне возможно только на TOF-дифрактометре с большим диапазоном по переданному импульсу.

Современная практика показала, что рутинный эксперимент может быть проведён с примерно одинаковым успехом на источнике любого типа. Но прецизионные или нестандартные данные можно получить только при адекватном выборе типа источника и дифрактометра. Более того, в особых случаях весьма полезным является проведение эксперимента при использовании дифрактометров обоих типов.

Перспективы увеличения светосилы TOF-дифрактометров в основном связаны с улучшением техники формирования и проводки нейтронных пучков и увеличением телесного угла детекторных систем. Оба направления бурно развиваются в последнее время, и в обоих есть резерв для дальнейшего прогресса. Например, установка нового суперзеркального нейтроновода на дифрактометре HRPD (ISIS) позволила добиться выигрыша в потоке нейтронов в 5–10 раз в основном интервале длин волн.

Такого же или даже большего выигрыша можно добиться благодаря использованию современных широкоформатных сцинтилляционных детекторов, покрывающих площади в несколько квадратных метров. Если ещё недавно телесные углы детекторов порошковых дифрактометров составляли несколько десятых долей стерадиана, то сейчас это уже несколько стерадианов, т.е. и по этому параметру коэффициенты увеличения 10–20 вполне достижимы.

Несколько меньше возможностей для увеличения разрешения TOF-дифрактометров. Есть планы увеличения пролётного расстояния вплоть до 200 м на строящемся источнике ESS, но это связано с сильным удорожанием установки. Больше перспектив у корреляционной техники. Простые оценки показывают, что при увеличении скорости вращения фурье-прерывателя на HRFD до 11 тыс. оборотов в 1 мин и пролётного расстояния между фурье-прерывателем и детектором до 30 м временной вклад в функцию разрешения составит 0,0002 при  $d = 2 \text{ \AA}$ . Геометрический вклад в этом случае может быть сделан примерно таким же, т.е.  $\Delta d/d \approx 0,0003$  при  $d = 2 \text{ \AA}$ , что близко к разрешающей способ-

ности порошковых дифрактометров на источниках синхротронного излучения.

Таким образом, использование корреляционных методов может обеспечить следующий шаг (после HRFD на реакторе ИБР-2) на пути увеличения разрешающей способности в нейтронной дифрактометрии при недостижимой для стационарных источников плотности потока нейтронов на образце.

## Список литературы

- Аксенов В Л *УФН* **179** 434 (2009); Aksenov V L *Phys. Usp.* **52** 406 (2009)
- Аксенов В Л, Балагуров А М *УФН* **166** 955 (1996); Aksenov V L, Balagurov A M *Phys. Usp.* **39** 897 (1996)
- Bacon G E (Ed.) *Fifty Years of Neutron Diffraction. The Advent of Neutron Scattering* (Bristol: A. Hilger, 1986)
- Zinn W H *Phys. Rev.* **71** 752 (1947)
- Shull C G et al. *Phys. Rev.* **73** 842 (1948)
- Shull C G, Smart J S *Phys. Rev.* **76** 1256 (1949)
- Brugger R M, Bennion R B, Worlton T G *Phys. Lett. A* **24** 714 (1967)
- Нитц В В, Сообщение ОИЯИ № 3-5372 (Дубна: ОИЯИ, 1970)
- Mezei F, Russina M, Kali Gy *Neutron News* **23** (1) 29 (2012)
- Dunning J R et al. *Phys. Rev.* **48** 704 (1935)
- Fermi E, Marshall J, Marshall L *Phys. Rev.* **72** 193 (1947)
- Egelstaff P A, in *Third Congress and General Assembly of the Intern. Union of Crystallography, July 21–July 28, 1954, Paris, France*
- Lowde R D *Acta Cryst.* **9** 151 (1956)
- Egelstaff P A, in *Proc. of the Symp. on Neutron Time-of-Flight Methods, Saclay, France, 24–27 July, 1961* (Ed. J Spaepen) (Brussels: European Atomic Energy Community, 1961) p. 69
- Buras V et al. *Nucleonika* **9** 523 (1964)
- Франк И М *ЭЧАЯ* **2** 807 (1972)
- Buras V, Leciejewicz J *Nukleonika* **8** 75 (1963)
- Нитц В В и др., Препринт Р-1440 (Дубна: ОИЯИ, 1963); *ФТТ* **6** 1370 (1964)
- Day D H, Sinclair R N *Acta Cryst. B* **26** 2079 (1970)
- Moore M J, Kasper J S, Menzel J H *Nature* **219** 848 (1968)
- Kimura M et al. *Nucl. Instrum. Meth.* **71** 102 (1969)
- Яник Е, в сб. *Илья Михайлович Франк, 1908–1990. К 90-летию со дня рождения* (Ред.-сост. А С Гиршева) (Дубна: ОИЯИ, 1998) с. 188
- Мачехина Т А и др., в сб. *Материалы Рабочего совещания по физике медленных нейтронов, Дубна, 7–12 декабря 1961 года* (ОИЯИ. Издания, № 956) (Дубна: ОИЯИ, 1962)
- Голиков В В *ЭЧАЯ* **26** 1633 (1995); Golikov V V *Phys. Part. Nucl.* **26** 684 (1995)
- Шапиро Ф Л *ЭЧАЯ* **2** 973 (1972); Shapiro F L *Sov. J. Part. Nucl.* **2** 96 (1972)
- Александров Ю А и др., Сообщение ОИЯИ № Р14-5358 (Дубна: ОИЯИ, 1970)
- Александров Ю А *Фундаментальные свойства нейтрона* (М.: Атомиздат, 1976) с. 148; Alexandrov Yu A *Fundamental Properties of the Neutron* (Oxford: Clarendon Press, 1992)
- Сосновска И и др., Сообщение ОИЯИ № 2653 (Дубна: ОИЯИ, 1966)
- Holas A et al., JINR Report E14-3759 (Dubna: JINR, 1968); *Nucl. Instrum. Meth.* **69** 173 (1969)
- Carpenter J M *Nucl. Instrum. Meth.* **47** 179 (1967)
- Александров Ю А и др. *ЯФ* **10** 328 (1969)
- Анцупов П С и др., Сообщение ОИЯИ № Р14-4548 (Дубна: ОИЯИ, 1969)
- Нитц В В *ЭЧАЯ* **32** 844 (2001)
- Hewat A W, Bailey I *Nucl. Instrum. Meth.* **137** 463 (1976)
- David W I F, Harrison W T A, Johnson M W *Mater. Sci. Forum* **9** 89 (1986)
- Mezei F, Russina M *Physica B* **283** 318 (2000)
- Балагуров А М и др. *ЭЧАЯ* **46** 453 (2015); Balagurov A M *Phys. Part. Nucl.* **46** 249 (2015)
- Keen D A, Gutmann M J, Wilson C C *J. Appl. Cryst.* **39** 714 (2006)
- Balagurov A M *Neutron News* **16** (3) 8 (2005)
- Aksenov V L et al. *Phys. Rev. B* **55** 3966 (1997)
- Abakumov A M et al. *Phys. Rev. Lett.* **80** 385 (1998)
- Балагуров А М и др. *ЭЧАЯ* **35** 1351 (2004)
- Balagurov A M et al. *Eur. Phys. J. B* **19** 215 (2001)
- Аксенов В Л, Балагуров А М, Помякушин В Ю *УФН* **173** 883 (2003); Aksenov V L, Balagurov A M, Pomyakushin V Yu *Phys. Usp.* **46** 856 (2003)
- Балагуров А М и др. *ЖЭТФ* **133** 605 (2008); Balagurov A M et al. *JETP* **106** 528 (2008)
- Балагуров А М и др. *Письма в ЖЭТФ* **88** 608 (2008); Balagurov A M et al. *JETP Lett.* **88** 531 (2008)
- Балагуров А М и др. *Письма в ЖЭТФ* **93** 293 (2011); Balagurov A M et al. *JETP Lett.* **93** 263 (2011)
- Балагуров А М и др. *ЖЭТФ* **141** 1144 (2012); Balagurov A M et al. *JETP* **114** 1001 (2012)
- Balagurov A M et al. *Mater. Sci. Eng.* **49** 012021 (2013)
- Курлов А С и др. *Письма в ЖЭТФ* **100** 712 (2014); Kurlov A S et al. *JETP Lett.* **100** 629 (2014)
- Балагуров А М и др. *Кристаллография* **58** 696 (2013); Balagurov A M et al. *Crystallogr. Rep.* **58** 710 (2013)
- Balagurov A M et al. *J. Magn. Magn. Mater.* **374** 591 (2015)
- Балагуров А М, Миронова Г М *Кристаллография* **36** 314 (1991)
- Balagurov A M et al. *J. Appl. Cryst.* **24** 1009 (1991)
- Миронова Г М, Сообщение ОИЯИ № Р13-88-326 (Дубна: ОИЯИ, 1988)
- Рябова Н Ю и др. *ФТТ* **52** 984 (2010); Ryabova N Yu et al. *Phys. Solid State* **52** 1050 (2010)
- Балагуров А М и др. *Успехи химии* **83** 1120 (2014); Balagurov A M et al. *Russ. Chem. Rev.* **83** 1120 (2014)
- Glazkov V P et al. *Nucl. Instrum. Meth. A* **264** 367 (1988)
- Besson J M et al. *Physica B* **180–181** 907 (1992)
- Kozlenko D P et al. *Phys. Rev. B* **89** 174107 (2014)
- Aksenov V L et al. *High Press. Res.* **14** 181 (1995)
- Kozlenko D P, Savenko B N *Phys. Part. Nucl.* **37** S1 (2006)
- Golosoza N O et al. *Phys. Rev. B* **79** 104431 (2009)
- Kozlenko D P et al. *Phys. Rev. B* **87** 014112 (2013)
- Egami T, Billinge S J L *Underneath the Bragg Peaks. Structural Analysis of Complex Materials* (Kiddington: Pergamon, 2003)
- Young R A (Ed.) *The Rietveld Method* (Oxford: Oxford Univ. Press, 1993)
- Scardi P, Leoni M *Acta Cryst. A* **58** 190 (2002)
- Leoni M, Confente T, Scardi P *Z. Kristallogr. Suppl.* **23** 249 (2006)
- Balagurov A M et al. *Mater. Charact.* **109** 173 (2015)
- Аксенов В Л, Ковальчук М В (Ред.) *Реакторный комплекс ПИК* (Гатчина: ПИЯФ НИЦ "Курчатовский институт", 2014) в 4-х томах
- Sosnowska I M *Cryst. Res. Technol.* **50** 705 (2015)

## Neutron diffraction on pulsed sources

### V.L. Aksenov

*B.P. Konstantinov Petersburg Nuclear Physics Institute of National Research Center "Kurchatov Institute",  
Orlova roshcha, 188300 Gatchina, Leningrad region, Russian Federation  
Tel. +7 (81371) 46 029. Fax +7 (81371) 36 025. E-mail: dir@pnpi.spb.ru  
Joint Institute for Nuclear Research,  
ul. Joliot-Curie 6, 141980 Dubna, Moscow region, Russian Federation  
Tel. +7 (49621) 65 796. E-mail: aksenov@nf.jinr.ru*

### A.M. Balagurov

*Joint Institute for Nuclear Research,  
ul. Joliot-Curie 6, 141980 Dubna, Moscow region, Russian Federation  
Tel. +7 (49621) 66 844. Fax +7 (49621) 65 484. E-mail: bala@nf.jinr.ru*

The possibilities currently offered and major scientific problems solved by time-of-flight neutron diffraction are reviewed. The reasons for the rapid development of the method over the last two decades has been mainly the emergence of third generation pulsed sources with a MW time-averaged power and advances in neutron-optical devices and detector systems. The paper discusses some historical aspects of time-of-flight neutron diffraction and examines the contribution to this method by F.L. Shapiro whose 100th birth anniversary was celebrated in 2015. The state of the art with respect to neutron sources for studies on output beams is reviewed in a special section.

**Keywords:** neutron diffraction, advanced neutron sources, pulsed neutron sources, time-of-flight technique, crystal structure

PACS numbers: 29.25.Dz, 61.05.fm

DOI: 10.3367/UFNr.0186.201603e.0293

Bibliography — 71 references

*Received 31 August 2015*

*Uspekhi Fizicheskikh Nauk* **186** (3) 293–320 (2016)

*Physics – Uspekhi* **59** (3) (2016)