

ПЕРВЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ СВОЙСТВ КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕД НА ИМПУЛЬСНОМ ИСТОЧНИКЕ НЕЙТРОНОВ

В.В.Голиков

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

В обзоре излагаются первые работы по исследованию свойств конденсированных сред, выполненные на импульсном реакторе ИБР Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ. Отмечается, что основы методов изучения конденсированных сред на импульсных источниках нейтронов были заложены под руководством Ф.Л.Шаниро. Приведено описание первых экспериментальных установок и рассмотрены отдельные направления исследований, для которых оказалось плодотворным использование импульсного источника нейтронов и метода времени пролета.

The review describes the first investigations of the properties of condensed matter, performed on the pulsed reactor IBR of the Laboratory of Neutron Physics, JINR. It is noted that the foundations of the method of studying condensed matter using pulsed neutron sources were laid down under the leadership of Prof. F.L.Shapiro. A description of the first experimental facilities is presented and certain directions of research which have benefited from the use of a pulsed neutron source and the time-of-flight method are considered.

1. ВВЕДЕНИЕ

В конце 50-х годов в реакторных центрах мира начал широко распространяться новый ядерно-физический метод исследований конденсированных сред — рассеяние медленных нейтронов. Ценность дифракции и неупругого рассеяния нейтронов определяется следующими характеристиками нейтрона, делающими его уникальным зондом при изучении свойств конденсированных сред.

1. Длина волны теплового нейтрона сравнима с расстояниями между атомами в конденсированных средах, следовательно, тепловые нейтроны претерпевают резко выраженные интерференционные эффекты при рассеянии на этих атомах. В то же время энергия нейтронов меньше, чем обычно

требуется для выбивания атома из вещества, поэтому образцы во время эксперимента не повреждаются.

2. Изменение энергии тепловых нейтронов в процессах неупругого рассеяния, связанное с рождением и поглощением возбуждений в твердых телах и жидкостях, часто того же порядка величины, что и начальная энергия нейтронов. Поэтому измерить его относительно легко.

3. Величина взаимодействия нейтрона с ядром изменяется нерегулярно с атомным номером, так что информацию о легких атомах обычно можно получить так же просто, как и информацию о тяжелых ядрах. Кроме того, поскольку величина взаимодействия нейтрона с ядром для разных изотопов одного и того же элемента различна, то иногда, изменяя изотопический состав, можно изменить рассеивающие свойства образца.

4. Нейтрон обладает магнитным моментом и поэтому испытывает магнитное рассеяние на атомах, обладающих атомным магнитным моментом. Этот процесс рассеяния, который обычно можно полностью отделить от ядерного рассеяния, дает информацию о структурных и динамических свойствах магнитных систем.

5. Нейтрон не обладает электрическим зарядом и может глубоко проникать в вещество, следовательно позволяет получать информацию об объемных свойствах образца, а не только о поверхностных, что обычно имеет место в случае рассеяния электронов и рентгеновских лучей.

Быстрому распространению нового метода изучения свойств конденсированных сред в значительной степени способствовало то обстоятельство, что при начале этих исследований физики на реакторах непрерывного действия использовали экспериментальную технику и накопленный опыт работы с рентгеновскими лучами. Так, первые исследования дифракции нейтронов, начатые в 1945 г. в Ок-Риджской национальной лаборатории (США) проводились на двухосном дифрактометре, второй осью которого служил стандартный прибор, обычно применяемый в рентгеновской спектроскопии. И именно на этой установке было выполнено большинство пионерских работ Воллана и Шалла [1]. В равной мере это замечание относится и к первым экспериментам по неупругому рассеянию нейтронов, впервые выполненным Брокхаузом [2] в Чок-Ривере (Канада) на трехосном кристаллическом спектрометре.

Первый импульсный реактор ИБР-1 по проекту создавался для решения сравнительно узкого круга задач, в первую очередь, для определения величин нейтронных сечений и изучения состояний атомных ядер [3]. Тем более приходится удивляться прозорливости, интуиции и таланту Ф.Л.Шапира, по инициативе и при непосредственном участии которого развитие нейтронных исследований по физике конденсированных сред в ЛНФ началось практически одновременно с пуском реактора ИБР-1 в 1960 г. При этом задача была существенно более сложной в методическом плане, поскольку

к тому времени полностью отсутствовал какой-либо опыт использования импульсных источников нейтронов для этих исследований, а прямое сопоставление средних мощностей реактора ИБР (1 кВт) и типичного реактора стационарного действия (10–20 МВт) как будто делало соперничество в этой области для импульсного реактора безнадежным. Нужны были талант и энтузиазм Ф.Л.Шапира для того, чтобы в течение двух-трех лет с участием ряда сотрудников ЛНФ создать практически полный арсенал методов нейтронных исследований конденсированных сред. Уже в мае 1964 г. на III Международной конференции ООН по использованию атомной энергии в мирных целях [4] отмечалось, что одним из двух основных направлений исследований на импульсном источнике нейтронов ИБР-1 является изучение жидкостей и твердых тел с помощью рассеяния нейтронов. Использование в таких исследованиях импульсного нейтронного источника сильно упрощало постановку опыта, так как отпадала надобность в монохроматоре при прерывателе падающего нейтронного пучка. Правда, длительность вспышки тепловых нейтронов оказывается весьма большой — она определяется средним временем жизни нейтрона в замедлителе, составляющем 200 мкс для «неотравленного» толстого водяного замедлителя. Ввиду этого для получения хорошего разрешения приходится использовать большие пролетные расстояния — порядка 10 м и более. Подчеркивалось, что ИБР, как показали эксперименты, предоставляет весьма хорошие возможности для развития твердотельных исследований. В таких работах к тому времени использовалось 5 установок: для измерений с холодными нейтронами; для исследования жидкостей и твердых тел методом «обратной геометрии»; для дифракционных измерений; для измерения двойных дифференциальных сечений рассеяния; для измерений фононных спектров кристаллов.

Успехи работ, выполненных на реакторе ИБР-1 в области физики конденсированных сред, были убедительны. Они привели к появлению ряда проектов импульсных источников нейтронов. На Международном совещании по перспективам использования нейтронной спектроскопии (октябрь 1970 г.), организованном ОИЯИ при поддержке МАГАТЭ, в докладах зарубежных ученых подчеркивалось, что «интерес к импульсным источникам нейтронов стимулируется серией пионерских экспериментов, впервые выполненных в Дубне на уникальном реакторе ИБР» [5]. Соревнование импульсных и стационарных источников нейтронов для физики конденсированных сред привело к пониманию их различий и достоинств. Опыт использования ИБР-1 выявил перспективность импульсных источников для дальнейшего прогресса исследований в физике конденсированных сред и обусловил создание как самого мощного на сегодня импульсного реактора ИБР-2, так и импульсных источников нейтронов на базе протонных ускорителей.

Обзор отдельных исследований, для которых плодотворным оказалось использование импульсного источника нейтронов, начнем с изложения результатов, полученных на первом созданном на ИБР-1 спектрометре для работ в области конденсированных сред — установки для изучения квазиупругого рассеяния холодных нейтронов.

2. УСТАНОВКА ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ РАССЕЯНИЯ ХОЛОДНЫХ НЕЙТРОНОВ

Создание установки началось в 1960 г. одновременно с пусковыми работами на реакторе и проводилось главным образом В.В.Голиковым и А.Шкатулой под руководством Ф.Л.Шапиро. Опыты с холодными нейтронами были начаты сразу же после запуска реактора ИБР в эксплуатацию в конце 1960 г. [6].

Схема установки приведена на рис.1. Реактор ИБР установлен в центре зала размером 10×10 м, стены которого служат защитой реактора. Активная зона реактора вместе с отражателем и устройствами регулирования имела размеры $\sim 25 \times 25$ см. Реактор генерировал нейтроны периодическими импульсами с полушириной 36 мкс при частоте повторения $8,3 \text{ с}^{-1}$. Средняя тепловая мощность реактора составляла 1 кВт.

Ключевым узлом установки являлся источник холодных нейтронов. По первоначальному проекту быстрые нейтроны из реактора замедлялись в слое парафина толщиной 5 см, который устанавливался на расстоянии 5 см от отражателя реактора. Этот вариант замедлителя на импульсном источнике не являлся оптимальным решением для получения интенсивного пучка холодных нейтронов. При создании источника холодных нейтронов авторами работы были использованы две новинки.

Во-первых, вплотную за парафиновым замедлителем был помещен блок поликристаллического бериллия длиной 24 см, являющийся фильтром холодных нейтронов. Расположение бериллия вплотную к замедлителю увеличивало поток холодных нейтронов в 3,5 раза по сравнению со случаем, когда бериллий находился вдали от замедлителя. Выигрыш в интенсивности был связан с тем, что бериллий играл роль отражателя тепловых и быстрых нейтронов. Холодные нейтроны, для которых бериллий прозрачен, выводятся из глубины замедляющего блока замедлитель — бериллий, где плотность тепловых, а значит, и холодных нейтронов существенно выше, чем на краю голого замедлителя при отодвинутом бериллии. Этот экспериментальный факт в последующие годы послужил основой для проведения серии исследований по оптимизации замедлителей для импульсных источников нейтронов. При этом исследования велись в следующих направлениях: по выбору

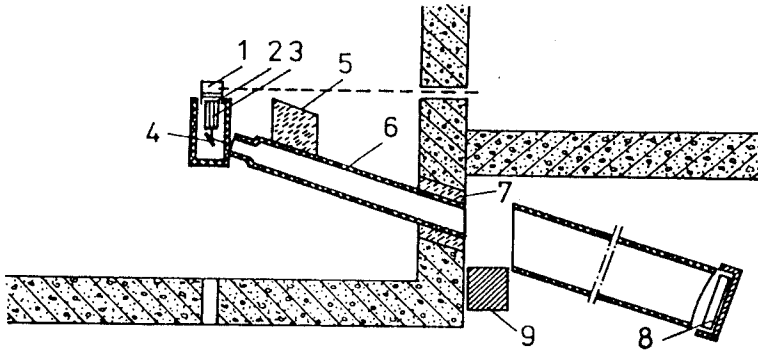


Рис.1. Схема установки для измерений с холодными нейтронами: 1 — активная зона реактора; 2 — замедлитель; 3 — бериллиевый фильтр; 4 — образец; 5 и 7 — защита; 6 — вакуумный нейтронновод; 8 — детектор; 9 — шиббер

материалов для замедлителей и его температуры, оптимизации формы и размеров, применению отражателей. Поскольку эти исследования проводились на других установках ИБР, мы изложим полученные результаты несколько позже.

Во-вторых, замедлитель и бериллий находились первоначально в пенопластовом криостате и охлаждались до температуры жидкого азота. Стенки криостата толщиной 6 см были склеены эпоксидным клеем. Холодные нейтроны выводились из криостата через окно, состоящее из 15 слоев алюминиевой фольги толщиной 10 мкм с зазором 5 мм между слоями — такая конструкция предохраняла окно от запотевания. Криостат заливался жидким азотом дистанционно из экспериментального зала; однократного заполнения хватало на 4 часа работы. Охлаждение замедлителя в $\approx 3,5$ раза увеличивало поток холодных нейтронов (охлаждение 24 см бериллия дополнительно увеличивало пропускание холодных нейтронов в 3 раза). Таким образом, в источнике холодных нейтронов был впервые реализован на импульсном источнике вариант «холодного замедлителя».

Фильтрованный пучок холодных нейтронов со средней энергией $\approx 0,0035$ эВ и резкой границей при 0,0052 эВ падал на исследуемый образец, расположенный на расстоянии 25 см от бериллия. В пучок холодных нейтронов дистанционно можно было вводить один из двух образцов. Энергия нейтронов, рассеянных на образце на угол $75^\circ \pm 4^\circ$, измерялась по времени пролета расстояния образец — детектор. Пролетная база от образца до детектора могла изменяться от 10 до 45 м. Для регистрации нейтронов

использовался сцинтилляционный детектор на основе смеси $ZnS(Ag) + B_2^{10}O_3$ площадью 2000 см^2 [7].

Вообще говоря, при фиксированной величине передачи энергии в акте рассеяния время регистрации рассеянного нейтрона t (отсчитываемое от середины импульса мощности реактора) испытывает некоторый разброс Δt , обусловленный в основном разбросом времени жизни холодных нейтронов в замедлителе τ и шириной их энергетического спектра. Однако, как отметил Ф.Л.Шапиро, наличие резкого обрыва спектра холодных нейтронов при $E = 0,0052 \text{ эВ}$ в ряде случаев позволяет сделать такие же выводы из эксперимента, как при наличии мономатической линии $E = 0,0052 \text{ эВ}$. В частности, при изучении малых передач (квазиупругое рассеяние в жидкостях) для определения передачи энергии и ее дисперсии можно опираться на положение переднего фронта спектра нейтронов, профильтрованных бериллием, и изменение его наклона из-за разброса передач энергии. В этом случае разрешающая способность установки имеет порядок величины $\Delta t/t \approx \nu/t$. Для измерения спектра нейтронов, падающих на образец, в данной установке использовалось упругое рассеяние на ванадии. Временная полуширина наклона бериллиевого края составила 120 мкс , что при прелетном расстоянии 45 м соответствует энергетическому разрешению $3 \cdot 10^{-5} \text{ эВ}$ для нейтронов с энергией $\sim 5,2 \cdot 10^{-3} \text{ эВ}$.

По предложению Ф.Л.Шапиро в качестве первого объекта исследований было избрано квазиупругое рассеяние холодных нейтронов на воде. Это было стимулировано появившейся незадолго до этого работой брукхэйвской группы [8] с сенсационным выводом о существовании в рассеянии холодных нейтронов на воде полностью упругой компоненты. Этот результат вызвал большой интерес у физиков, занимающихся вопросами динамики молекул в жидкостях, и в различных лабораториях мира было выполнено значительное число работ, посвященных спектрам рассеяния холодных нейтронов на воде [9,10]. Анализируя квазиупругое рассеяние холодных нейтронов на воде, различные авторы приходили к несогласующимся выводам, получая значение коэффициента самодиффузии молекул воды D в пределах от $D < 0,1D_0$ [11] до $D = D_0$ [12,13], где D_0 — коэффициент самодиффузии, измеренный классическими методами, такими, например, как ядерный парамагнитный резонанс (при комнатной температуре $D_0 = 1,85 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}$). Квазиупругое рассеяние холодных нейтронов на воде было в центре внимания участников трех организованных МАГАТЭ симпозиумов по неупругому рассеянию нейтронов в Вене [9], Чок-Ривере [10] и Бомбее [14].

В связи с отмеченными противоречиями и для выяснения положения в Дубне было предпринято изучение квазиупругого рассеяния в воде [15] с разрешающей способностью значительно лучшей, чем использованная в

предыдущих работах. Как указано выше, при работе на пролетном расстоянии 45 м мы имели энергетическое разрешение $3 \cdot 10^{-5}$ эВ для нейтронов с энергией $\sim 5,2 \cdot 10^{-3}$ эВ. Эту величину можно сравнивать с предельным разрешением $2 \cdot 10^{-4}$ эВ, использованным в предыдущих работах [12].

Сравнение спектров нейтронов, рассеянных слоем воды при комнатной температуре и ванадием, показывало, вне всякого сомнения, что при рассеянии на воде линия $5,2 \cdot 10^{-3}$ эВ уширяется. Для количественной оценки нужно исходить из выражения для зависимости скорости счета $N(t)$ рассеянных нейтронов от времени пролета t :

$$N(t)dt = dt \frac{dE}{dt} \int_0^{E_0} F(E')\sigma(E')W(E', E)dE', \quad (1)$$

где $F(E')dE'$ — спектр падающего на образец потока; $\sigma(E')$ — сечение рассеяния на образце; $W(E', E)dE'$ — спектр рассеянных нейтронов для первичной энергии E' .

В теории квазиупругого рассеяния [16,17] $W(E', E)$ имеет лоренцеву форму с шириной на половине высоты Γ . В модели непрерывной диффузии [16]

$$\Gamma = 2h\kappa^2 D, \quad (2)$$

где $h\kappa$ — изменение импульса при рассеянии.

В модели прыжковой диффузии [17] квазиупругий пик также обладает лоренцевой формой при условии, что время прыжка τ_1 много меньше времени колебательного движения τ_0 . В этом случае, если средний квадрат смещения за время τ_1 много больше среднего квадрата отклонения молекулы от положения равновесия,

$$\Gamma = \frac{2h}{\tau_0} \left(1 - \frac{e^{-2W}}{1 + \kappa^2 D \tau_0} \right), \quad (3)$$

где W — дебай-валеровский фактор.

При ступенчатой форме падающего нейтронного спектра ($F(E') = 0$ для $E' > E_0$, $F(E')dE' = E'dE'$ для $E' \leq E_0$) квазиупругое рассеяние приводит к размытию границы спектра. Для определения Γ можно воспользоваться расстоянием от середины бериллиевого края для ванадия до максимума распределения для воды. Это расстояние сложным образом зависит от Γ и вида $F(E')$ и $\sigma(E')$. Поскольку последние в данной работе не изучались, этот путь оказался Ф.Л.Шапиро неоднозначным, и по его предложению авторы работы [15] предпочли опираться на значение логарифмической производной

$N'(t)/N(t)$ в центре бериллиевого края. Значение производной слабо зависит от вида $F(E')\sigma(E')$; полагая $F(E')\sigma(E') \cong E'$, получим следующее выражение для Γ , являющееся хорошим приближением:

$$\Gamma = \frac{8E_0}{\pi} \frac{1}{t_0/\Delta t + 5}. \quad (4)$$

Здесь E_0 , t_0 — энергия и время пролета для бериллиевого края; Δt — полуширина границы в шкале времени пролета. С учетом аппаратурного разрешения Δt вычислялось по формуле

$$\Delta t = \sqrt{(\Delta t_1)^2 - (\Delta t_2)^2},$$

где Δt_1 и Δt_2 — полуширина для жидкости и ванадия соответственно.

Полученное для воды при комнатной температуре значение $\Gamma = (5 \pm 1) \cdot 10^{-4}$ эВ при угле рассеяния 75° ($\kappa^2 = 3,7\text{А}^{-2}$) соответствовало величине $D = 0,5D_0$.

В последующих работах [18] изучение квазиупругого рассеяния холодных нейтронов было выполнено и на других водородосодержащих жидкостях, отличающихся друг от друга характером межмолекулярного взаимодействия. Некоторое усовершенствование установки [19] позволило распространить измерения на область больших передач энергии (неупругое рассеяние) и проводить их при различных температурах, в том числе и ниже точки плавления. Проведенные исследования дали информацию о параметрах и механизме самодиффузии молекул в жидкостях, как образующих межмолекулярные водородные связи (вода, этиленгликоль, уксусная кислота), так и не образующих подобных связей (бензол, нафталин, диоксан).

Анализ полученных результатов показал, что измеренные значения Γ меньше рассчитанных, причем разница была особенно велика для жидкостей, в которых существуют межмолекулярные водородные связи (рис.2). Уменьшение Γ по сравнению со значением, даваемым (2), можно объяснить прыжковым механизмом диффузии. Напрашивается вывод, что прыжковая диффузия более сильно проявляется в жидкостях с водородной связью.

Описанная установка создавалась для измерения упругого и квазиупругого рассеяния холодных нейтронов. Для таких измерений она характеризовалась высокой разрешающей способностью и большой интенсивностью. Однако из-за расположения образца в непосредственной близости от активной зоны реактора доступ к нему был затруднен. К тому же рассеянный пучок приходилось выводить через имевшийся канал в защите реактора, и, следовательно, изменять угол рассеяния было непросто. Вполне есте-

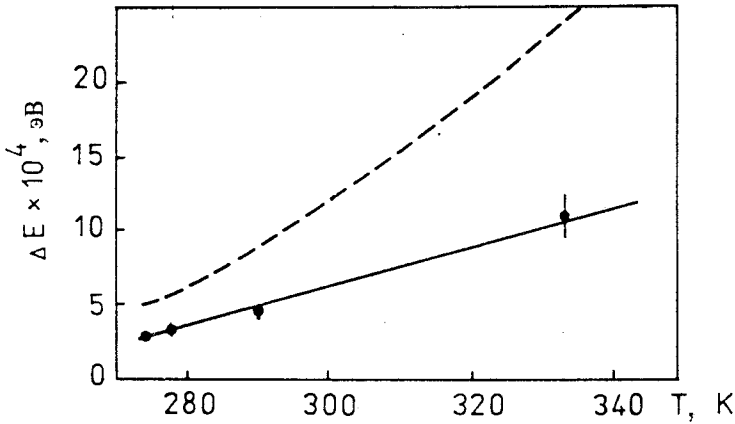


Рис.2. Температурная зависимость полуширины квазиупругого пика $\Gamma \equiv \Delta E$ для воды. Сплошная кривая — экспериментальные данные; штриховая — расчет по формуле непрерывной диффузии на основе экспериментальных значений D

ственно было перейти к так называемому методу «обратной геометрии», который в дальнейшем полностью вытеснил первоначальную методку.

3. СПЕКТРОМЕТР ПО ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА С ФИЛЬТРОМ ПЕРЕД ДЕТЕКТОРОМ

В методе обратной геометрии измеряется энергия $\hbar\omega$, передаваемая нейтронами образцу в процессе рассеяния, т.е. $\hbar\omega = E_0 - E'$. Энергия нейтрона E_0 , падающего на исследуемое вещество, произвольна и определяется по времени пролета от реактора до детектора. Энергия нейтронов после рассеяния E' определяется полосой пропускания фильтра, помещенного перед детектором. Чтобы обеспечить достаточную пролетную базу, образец располагается на расстоянии $20 \div 30$ м от реактора. Поэтому изменение условий опыта (смена образцов, изменение их температуры, изменение углов рассеяния и т.п.) не представляет затруднений для экспериментатора. Метод имеет еще и то преимущество, что измеряется сечение передачи энергии нейтрона атомам образца. Это сечение остается значительным и при низких температурах в отличие от сечения обратного процесса, измеряемого в прямой геометрии, которое падает при охлаждении образца.

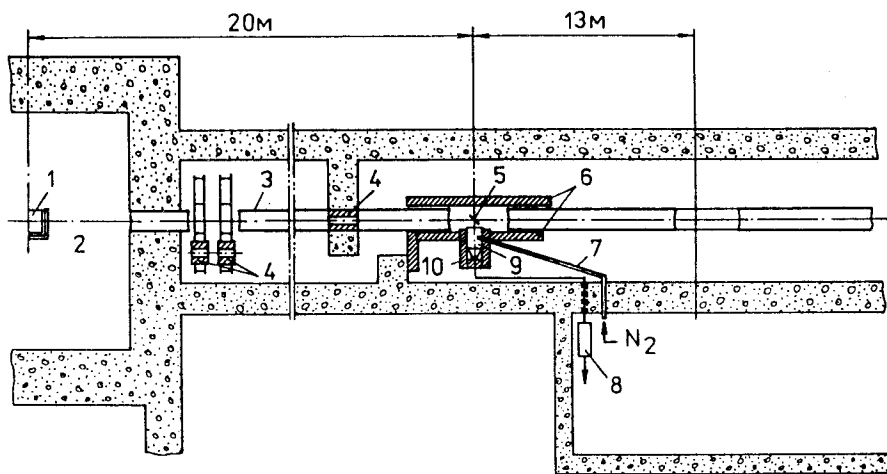


Рис.3. Схема установки для исследования жидкостей и твердых тел методом «обратной геометрии»: 1 — активная зона реактора; 2 — замедлитель; 3 — вакуумный нейтронпровод; 4 — коллиматоры; 5 — образец; 6 — защита; 7 — азотопровод; 8 — электроника детектора; 9 — бериллиевый фильтр; 10 — детектор

Метод обратной геометрии по предложению Ф.Л.Шапиро был впервые использован в ЛНФ в 1961 г. [20]. В этой работе Ф.Л.Шапиро совместно с Т.А.Мачехиной и З.Огжевальским исследовали возможность использования резонансных нейтронов импульсного источника для извлечения некоторых интегральных характеристик спектра частот твердого тела. Для этой цели перед детектором был помещен фильтр (золотая фольга), обладающий изолированным узким резонансом с энергией около 5 эВ. Через два года Ф.Л.Шапиро снова вернулся к методу обратной геометрии, но уже с использованием тепловых и холодных нейтронов. Под его руководством А.Байорек, Т.А.Мачехиной и К.Парлиньским был создан первый в ЛНФ вариант спектрометра по времени пролета с бериллиевым фильтром перед детектором, схема которого приведена на рис.3 [21]. Медленные нейтроны, вышедшие из замедлителя, рассеивались на образце, установленном на расстоянии 20÷30 м от активной зоны реактора. Рядом с образцом под определенным углом относительно оси падающего пучка помещался криостат с бериллиевым фильтром, охлаждаемым до температуры жидкого азота. Нейтроны, рассеянные на образце, после прохождения фильтра регистрировались сцинтилляционным детектором. Криостат вместе с детек-

тором мог перемещаться при допустимом изменении угла рассеяния в пределах $30 \div 120^\circ$.

Для подбора лучших условий эксперимента авторами работы был выполнен обширный цикл исследований по сравнению различных замедлителей на реакторе ИБР с точки зрения среднего времени жизни нейтронов и их выхода. Время жизни τ определялось по наклону переднего фронта спектра нейтронов, профильтрованных слоем бериллия толщиной 16 см. Форма бериллиевой границы в зависимости от времени пролета T довольно хорошо описывалась формулой

$$N(T) = \left(\frac{T_0}{T} \right)^5 - \exp \left(- \frac{T - T_0}{\tau} \right),$$

где T_0 — время пролета, соответствующее началу крутого подъема бериллиевой границы. В качестве источников медленных нейтронов были исследованы плоские слои воды толщиной 36 и 56 мм и этилового спирта толщиной 36 мм, а также более сложные конфигурации в виде дырочного замедлителя и замедлителя с бериллиевым отражателем. Дырочный замедлитель представлял собой сплошной слой спирта толщиной 36 мм, к которому дополнительно присоединялся блок из плексигласа толщиной 60 мм. На всю толщину плексигласа были сделаны дырки диаметром 5 мм, которые занимали $\cong 50\%$ площади замедлителя. Замедлителем с бериллиевым отражателем являлся плоский слой спирта толщиной 36 мм, к которому примыкал блок бериллия толщиной 80 мм.

Результаты измерений показали, что лучшими характеристиками в области холодных нейтронов как по выходу нейтронов J , так и по параметру качества J/t^2 (t — эффективная длительность нейтронного импульса) обладают охлажденные до температуры жидкого азота замедлители дырочный и с бериллиевым охлаждением. При этом охлаждение до температуры жидкого азота повышало поток холодных нейтронов в 3 раза в обоих случаях. В области тепловых нейтронов наибольший выход давал дырочный замедлитель при комнатной температуре, а по величине параметра J/t^2 лучшим являлся водяной замедлитель толщиной 36 мм.

В последующие годы идея Ф.Л.Шапиро о получении на импульсных источниках интенсивных пучков медленных нейтронов путем выведения их из глубины замедлителя была развита Н.А.Гундориным и В.М.Назаровым [22]. В этой работе дано описание так называемого гребенчатого водяного замедлителя, представляющего собой сплошной слой воды толщиной $\cong 3$ см. Высота гребней $h = 10$ см выбрана так, чтобы общая усредненная толщина замедлителя по воде была не менее 8 см. При таком слое воды на глубине 3 см достигается максимальная плотность потока нейтронов. Исследования гребенчатого замедлителя показали, что он эффективнее дырочного замед-

лителя и замедлителя с отражателем из бериллия. В настоящее время гребенчатый замедлитель широко используется на импульсных источниках нейтронов ЛНФ: реакторах ИБР-30 и ИБР-2.

Созданный при непосредственном участии Ф.Л.Шапиро спектрометр обратной геометрии обладал удовлетворительными характеристиками в отношении разрешающей способности, интенсивности и отношения эффект — фон при исследовании процессов упругого или квазиупругого рассеяния холодных нейтронов и неупругого рассеяния нейтронов с передачей энергии до 130 мэВ. Дальнейшее развитие этого спектрометра велось группой физиков из Польши под руководством проф. Е.Яника и включало применение монокристаллического анализатора энергии после бериллиевого фильтра [32], увеличение числа одновременно действующих детекторов и одновременную регистрацию дифракционных спектров и спектров неупругого рассеяния [33,34].

Главной тематикой исследований на описанном спектрометре обратной геометрии в первые годы была динамика возбуждений молекулярных кристаллов. Были выполнены также работы по исследованию динамики возбуждений двойных сплавов, в частности, изучено влияние легких примесных атомов на спектр колебаний [34].

Из многих экспериментов, проведенных методом обратной геометрии, кратко остановимся на работе, выполненной В.В.Голиковым и Ж.А.Козловым под руководством Ф.Л.Шапиро [23]. В этой работе изучалось рассеяние медленных нейтронов на малые углы жидким свинцом с целью исследования нейтронного аналога мандельштам-бриллюэновского рассеяния света для области частот порядка 10^{12} , недоступной оптическим методам.

Как известно [24], в спектре рэлеевского рассеяния света жидкостями наблюдаются три линии: несмещенный пик и две компоненты так называемого дублета Мандельштама — Бриллюэна, расположенные симметрично относительно несмещенной линии на расстоянии $\Delta\omega$, пропорциональном скорости распространения звука u :

$$\Delta\omega = \pm u|q|,$$

где q — изменение импульса фотона при рассеянии. Аналогичное спектральное распределение интенсивности должно наблюдаться и при когерентном рассеянии нейтронов, если оно происходит с достаточно малой передачей импульса k .

Схема установки по рассеянию нейтронов на малые углы приведена на рис.4. Энергия нейтронов, падающих на образец, определялась по времени пролета расстояния замедлитель — образец (10 м) и образец — детектор (2,4 м). При этом энергия рассеянных нейтронов, регистрируемых детектором, задавалась в одних опытах кристаллическим монохроматором, в других — охлаждаемым бериллиевым фильтром. Установка позволяла осу-

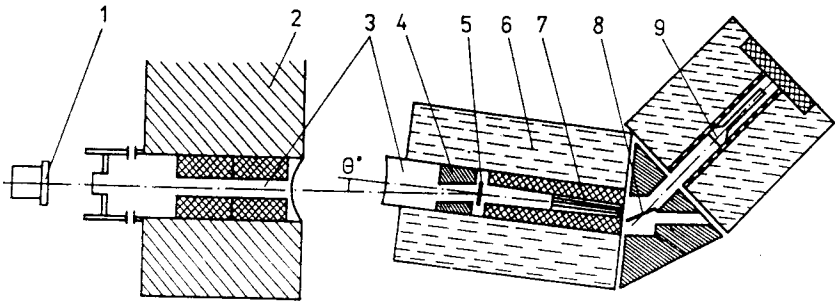


Рис.4. Схема установки по рассеянию нейтронов на малые углы: 1 — активная зона с замедлителем; 2, 4, 6 — защита; 3 — вакуумные нейтронотводы; 5 — образец; 7 — соллеровский коллиматор; 8 — кристалл-монокроматор (или бериллиевый фильтр с детектором); 9 — детектор

существлять плавное изменение угла рассеяния нейтронов в пределах от 3° до 90° . Для изучения влияния многократного рассеяния серия измерений проделана на образце, который состоял из ячеек жидкого свинца размером $5 \times 5 \times 5$ мм, разделенных между собой перегородками из сильно поглощающего материала (кадмий в алюминиевом кожухе).

Из анализа полученных данных в жидком свинце было установлено наличие двух типов высокочастотных коллективных возбуждений, характеризующихся дисперсионными соотношениями, аналогичными законам дисперсии продольных и поперечных колебаний в твердом свинце. Проведено сравнение экспериментальных результатов с поликристаллической моделью жидкости и гидродинамической моделью, учитывающей зависимость кинетических коэффициентов от частоты, и указаны их пределы применимости. Авторами работы сделан вывод о том, что применительно к жидкому свинцу переход к чисто гидродинамическому описанию ожидается при $k \leq 0,1 \text{ \AA}^{-1}$.

4. ДИФРАКТОМЕТР ПО ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА

До появления импульсного источника нейтронов структурный анализ поликристаллов состоял в измерении углового распределения моноэнергетических нейтронов, рассеянных на образце. Основной причиной распространности этого метода являлось то, что в течение многих лет он использовался в рентгенографии. Как отмечено во введении, двухосевой нейтронный кристаллический спектрометр очень похож на спектрометр,

используемый в рентгеноструктурных исследованиях, а при количественном анализе справедливы, в сущности, те же выражения для интегральной интенсивности. Однако с появлением импульсного источника нейтронов метод времени пролета может рассматриваться как альтернатива упомянутому распространенному методу. Уже с самого начала при обсуждении программы работ на импульсном реакторе ЛНФ было очевидно, что в дифракции при заданном угле отражения нет необходимости в монохроматизации нейтронов, т.к. различные нейтроны, удовлетворяющие условию Брэгга, имеют различную скорость и разделены по времени пролета.

Метод дифракции нейтронов по времени пролета был экспериментально и теоретически обоснован в результате работ Ф.Л.Шапира, В.В.Нитца, И. и Е.Сосновски и группы физиков из Варшавы под руководством Б.Бураца [25—29].

В методе времени пролета производится рассеяние импульсного нейтронного пучка на поликристалле и нейтронным детектором регистрируются нейтроны, рассеянные на определенный угол 2θ . В результате получается зависимость интенсивности от длины волны. Пики идентифицируются обычным образом, однако для получения из нейтронограммы структурного фактора необходимо знать формулу для интегральной интенсивности J . В случае пренебрежения тепловыми колебаниями, поглощением и экстинкцией

$$J = \frac{i(\lambda)j(F_{hkl})^2\lambda^4}{4 \sin \theta_0} \frac{\delta V}{V^2} \operatorname{ctg} \theta_0 \Delta\theta_0, \quad (5)$$

где $i(\lambda)$ — интенсивность нейтронов, отнесенная к единичному интервалу по длине волны; j — фактор повторяемости для плоскости (hkl) ; F_{hkl} — структурный фактор; V и δV — объемы единичной ячейки и кристалла соответственно; θ_0 — угол рассеяния и $\Delta\theta_0$ — угловая расходимость нейтронного пучка. Формула (5) дает интегральную интенсивность во всем кольце Дебая — Шерера.

Принимая во внимание постоянство (для каждого эксперимента) некоторых величин, входящих в (5), легко получить соотношение

$$j(F_{hkl})^2 = \operatorname{const} \frac{J}{i(\lambda)\lambda^4}, \quad (6)$$

из которого следует, что для получения из нейтронограммы относительных величин структурных факторов необходимо измерить площади пиков, нормировать их на спектр нейтронов $i(\lambda)$ и поделить на λ^4 . Чтобы не делать поправки на эффективность детектора, спектр $i(\lambda)$ и рассеянный пучок нужно измерять одним детектором.

Рис.5. Схема установки для дифракционных измерений: 1 — активная зона реактора; 2 — замедлитель; 3 и 6 — щелевые коллиматоры; 4, 5, 9 — защита; 7 — образец; 8 — детектор; 10 — вакуумный нейтронвод

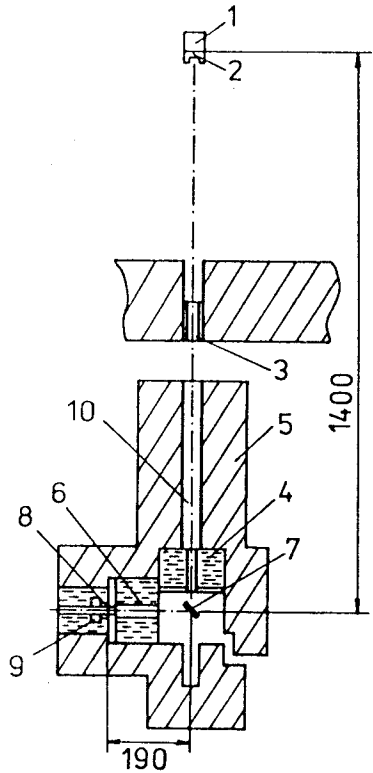
На рис.5 показана схема одного из первых экспериментов по выяснению возможностей импульсного источника нейтронов в области структурной нейтрографии. Пучок нейтронов из замедлителя проходил через коллиматор соллеровского типа и рассеивался на образце. Рассеянный пучок проходил через второй, идентичный первому, коллиматор, установленный под углом 90° к направлению прямого пучка, и регистрировался детектором. Пролетное расстояние составляло 18,0 м.

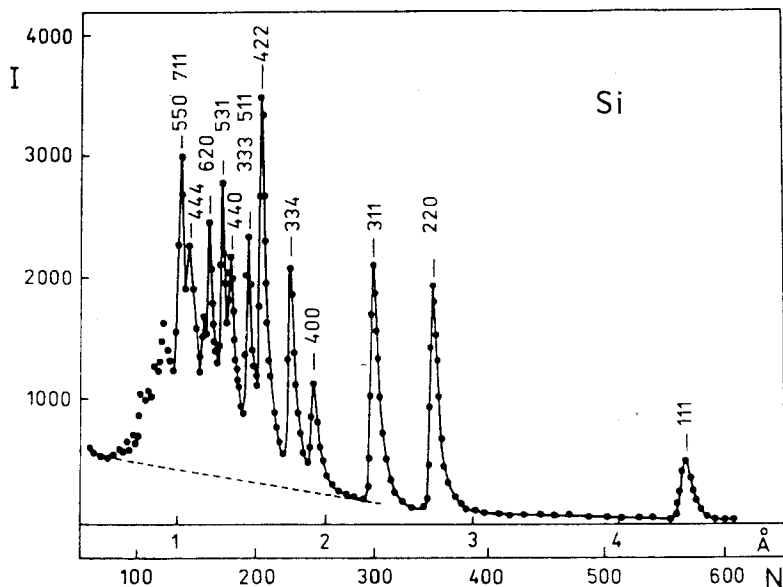
Исследования проводились на образцах Al, Zn, ZnO и Si, имеющих различные структуры. На рис.6 для примера представлена нейтронограмма кремния. Экспериментальные данные обрабатывались согласно формуле (6). Для всех образцов получено хорошее совпадение теоретических значений $jF_{\text{расч.}}^2$ и экспериментальных $jF_{\text{эксп.}}^2$. Фактор достоверности, характеризующий точность полученных результатов,

$$R = \frac{\sum (jF_{\text{эксп.}}^2 - jF_{\text{расч.}}^2)}{\sum jF_{\text{эксп.}}^2}$$

в случае кремния составил около 2%.

В первых работах была исследована зависимость разрешающей способности и интенсивности от формы и состава замедлителя, а также от угла рассеяния нейтронов. В качестве источников медленных нейтронов изучались толстый водяной замедлитель, имеющий углубление в середине, а также плоские замедлители (толщиной 40 мм), заполненные чистой водой и водой с примесью 0,3 и 0,6% борной кислоты (по массе). Отмечается, что наилучшее разрешение было получено с плоским замедлителем из водяного раствора борной кислоты.



Рис.6. Нейтрограмма кремния для угла $2\theta = 90^\circ$

Метод времени пролета обладает рядом существенных преимуществ по сравнению с обычными методами. В последнем случае используемая длина волны нейтронов из-за примеси отражений более высокого порядка не может существенно превышать значения 2Å . В методе времени пролета нет ограничений на угол рассеяния, и поэтому могут быть использованы нейтроны с большой длиной волны. Из-за множителя λ^4 в формуле (5) даже длинноволновый хвост максвелловского спектра может обеспечивать достаточную интенсивность дифракционных пиков. Возможность использования длинноволновой части спектра особенно желательна при изучении кристаллов с большой элементарной ячейкой, например, при использовании магнитных структур.

Техника времени пролета обладает тем достоинством, что под заданным углом рассеяния позволяет получить все результаты сразу. Это является большим преимуществом при работе с образцами под высоким давлением, в которых по соображениям прочности можно оставлять для прохождения нейтронов только маленькие окна.

Недостатком метода времени пролета является проявление энергетической зависимости сечения поглощения нейтронов, если поглощение значительно. В этом случае необходимо вводить поправки.

Среди последующих методических разработок, выполненных по усовершенствованию метода времени пролета для структурных исследований, особенно отметим работу А.Холаса [30]. Автор впервые показал, при каких условиях можно достичь при дифракции фокусировки по времени пролета. Из общих соотношений, полученных Холасом, следовало, что нет необходимости в жесткой коллимации пучка падающих и рассеянных нейтронов. Расчеты Холаса были проверены экспериментально. Отсутствие необходимости жесткой коллимации пучка, характерной для обычного метода дифракции, делает метод дифракции по времени пролета очень светосильным.

В первых же своих работах авторы разработки метода дифракции нейтронов по времени пролета указали на возможность его эффективного использования для исследований, выходящих за рамки классической тематики нейтронно-дифракционных работ. Метод времени пролета может быть применен в сочетании с импульсным полем (электрическим или магнитным), действующим на образец с частотой, совпадающей с частотой вспышек нейтронного пучка. При действии импульса поля одновременно с рассеянием нейтронов можно изучать изменение структуры под действием очень сильного поля, недостижимого в стационарном режиме. В зависимости от длительности импульса поля по отношению к длительности вспышки нейтронов и времени их пролета до образца можно наблюдать влияние поля на весь спектр, на несколько пиков или даже на один дифракционный пик.

Изменяя временной сдвиг импульса поля относительно вспышки нейтронов, можно изучать переходные эффекты (релаксационные процессы). При использовании высокоинтенсивного импульсного источника нейтронов, когда можно получить полную нейтронограмму за несколько минут, возможно изучение процессов с временем релаксации больше нескольких минут.

В первой из работ этого направления [31] было исследовано поведение двух дифракционных пиков магнитного рассеяния нейтронов в гематите, на который накладывалось большое импульсное магнитное поле (до 120 кЭ).

5. УСТАНОВКА ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ ДВОЙНЫХ ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫХ СЕЧЕНИЙ РАССЕЯНИЯ

При исследовании неупругого взаимодействия нейтронов полезно иметь возможность воздействовать на вещество моноэнергетическим пучком нейтронов и определять при этом для различных углов рассеяния весь спектр нейтронов, возникающих после неупругого взаимодействия. С этой целью и был создан на ИБР дважды дифференциальный спектрометр медленных

нейтронов. Работа была выполнена группой физиков из ФЭИ (Обнинск) под руководством В.А.Парфёнова [35]. Основой установки является механический прерыватель нейтронного пучка, вращающийся синхронно и синфазно с диском ИБР и установленный на расстоянии 10 м от него. Изменяя фазу вращения прерывателя, можно изменять энергию нейтронов, проходящих через прерыватель в виде импульса определенной длительности. Таким образом, селектор выполняет роль монохроматора. Спектр, образующийся в результате рассеяния моноэнергетической нейтронной вспышки на образце, измеряется по времени пролета сразу под одиннадцатью углами с пролетной базой от 5,5 до 10,5 м.

В первые годы с помощью этой установки были выполнены обширные исследования неупругого рассеяния медленных нейтронов на гидриде циркония, воде при различных температурах и ряде органических соединений.

В конце 60-х годов по предложению Ф.Л.Шапиро на этой установке были начаты эксперименты по исследованию фундаментального объекта — квантовой жидкости He II. На первом этапе эти работы проводились Ж.А.Козловым и В.А.Парфёновым. Первоначально особое внимание уделялось изучению квантового эффекта бозе-конденсации в сверхтекучем гелии [35]. В ходе этих исследований, позволяющих найти из эксперимента распределение атомов гелия по импульсам, было показано, что существует температура бозе-конденсации, которая совпадает с температурой перехода жидкого гелия в сверхтекучее состояние. Ниже этой температуры при ее понижении наблюдается возрастание количества атомов гелия с нулевым импульсом (бозе-конденсата). Температурная зависимость плотности бозе-конденсата совпадает с аналогичной зависимостью для сверхтекучей компоненты гелия. В современных теоретических описаниях сверхтекучести бозе-конденсат вводится изначально. Это приводит к тому, что спектр одночастичных возбуждений в жидком ${}^4\text{He}$ приобретает сложную структуру. В экспериментах, выполненных в ЛНФ в последнее время [36], показано, что при переходе в сверхтекучее состояние к уже наблюдаемой сложной структуре спектра возбуждений в He I добавляется новая ветвь возбуждений, которая наблюдается только при температуре ниже λ -перехода. Интенсивность этой ветви быстро увеличивается при понижении температуры, и именно эта ветвь связывается с существованием бозе-конденсата в сверхтекучем ${}^4\text{He}$.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Зарождение и развитие исследований по физике конденсированных сред в ЛНФ ОИЯИ неразрывно связаны с именем Ф.Л.Шапиро. Фактически в 60-х годах под руководством Ф.Л.Шапиро были заложены основы методов

изучения конденсированных сред на импульсных источниках нейтронов. Первый опыт физических исследований, полученный в начальные годы работы ИБРА, показал, что в распоряжение экспериментаторов поступил новый эффективный источник нейтронов, который с успехом может быть использован для решения различных научных задач.

Как и во всякой новой методике, первые эксперименты в значительной степени состояли в исследовании экспериментальных возможностей, которые несет с собой эта методика. Вместе с тем в ряде направлений исследований, для которых плодотворным оказалось использование импульсного источника нейтронов и метода времени пролета, уже в первые годы работы были получены результаты, являющиеся либо совершенно новыми, либо существенно более точными по сравнению с известными ранее данными.

Нейтронные исследования по физике конденсированных сред получили новые превосходные возможности после создания мощного импульсного реактора ИБР-2, который не только расширил возможности уже существующих направлений исследований, но и открыл ряд новых. В настоящее время в ЛНФ действуют 12 спектрометров по времени пролета для исследования свойств конденсированных сред методами дифракции и неупругого рассеяния нейтронов. Научные работы, выполняемые в ЛНФ, во многих случаях тесно связаны с направлениями исследований Ф.Л.Шапиро или высказанными им идеями.

Автор весьма признателен Ж.Ф.Козлову и В.В.Нитцу, оказавшим большую помощь при подготовке этой статьи к печати.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wollan E.O., Shull C.G. — Phys. Rev., 1948, vol.73, p.527, 830, 842;
Shull C.G., Wollan E.O. — Phys. Rev., 1951, vol.81, p.527; vol.83, p.333; vol.84, p.912.
2. Brockhouse B.N. — Phys. Rev., 1955, vol.99, p.601;
Brockhouse B.N., Stewart A.T. — Phys. Rev., 1955, vol.100, p.756.
3. Блохин Г.Е., Блохинцев Д.И. и др. — АЭ, 1961, т.10, с.437.
4. Бунин Б.Н., Матора И.М. и др. — В сб.: Труды III Международной конференции ООН по использованию атомной энергии в мирных целях (доклад A/Conf. 28/P/324), Женева, май 1964.
5. Синклер Р.Н., Дей Д.Г. — ЭЧАЯ, 1972, т.2, вып.4, с.983.
6. Голиков В.В., Шапиро Ф.Л., Шкагула А., Яник Е. — В сб.: Материалы рабочего совещания по физике медленных нейтронов. Дубна 7–12 декабря 1961. ОИЯИ 956, Дубна, 1962, с.184; Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids, IAEA, Vienna, 1963, vol.1, p.119.

7. Голиков В.В., Шимчак Г.Ф., Шкатула А. — ПТЭ, 1963, т.2, с.59.
8. Hughes D.J., Palevsky H., Kley W., Tunkelo E. — Phys. Rev., 1960, vol.119, p.872.
9. *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*. Vienna, 1961.
10. *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*. Vienna, 1963.
11. Stiller H.H., Danner H.R. — *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*. Vienna, 1961, p.363.
12. Brockhouse B.N. — *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*. Vienna, 1961, p.113.
13. Cribier D., Jacrot B. — *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*. Vienna, 1961, p.347.
14. *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*. Vienna, 1965.
15. Байорек А., Голиков В.В., Жуковская И. и др. — *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*. Vienna, 1963, vol.1, p.383.
16. Vineyard G.H. — Phys. Rev., 1958, vol.110, p.999.
17. Singwi K.S., Sjolander A. — Phys. Rev., 1960, vol.119, p.863.
18. Голиков В.В., Жуковская И., Шапиро Ф.Л. и др. — *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*. Vienna, 1965, vol.2, p.201.
19. Голиков В.В., Шапиро Ф.Л., Шкатула А. — ПТЭ, 1966, т.1, с.62.
20. Мачехина Т.А., Огжевальский З.И., Шапиро Ф.Л. — В сб.: Материалы рабочего совещания по физике медленных нейтронов. Дубна 7–12 декабря 1961 г. ОИЯИ 956, Дубна, 1962, с.180.
21. Байорек А., Мачехина Т.А., Парлиньски К., Шапиро Ф.Л. — *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids*, IAEA, Vienna, 1965, vol.2.
22. Гундорин Н.А., Назаров В.М. — Сообщение ОИЯИ РЗ-80-721, Дубна, 1980.
23. Голиков В.В., Козлов Ж.А., Шапиро Ф.Л. — *Research Applications of Nuclear Pulsed Systems*, IAEA, Vienna, 1967, p.161;
Голиков В.В., Козлов Ж.А. — УФЖ, 1970, т.15, с.1772.
24. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. — *Электродинамика сплошных сред*. М.: Изд-во физ-мат. лит-ры, 1959; *Фабелинский И.Л.* — *Молекулярное рассеяние света*. М.: Наука, 1965.
25. Bugar V. — *Nucleonika*, 1963, vol.8, p.259.
26. Нитц В.В., Папулова З.Г., Сосновска И., Сосновски Е. — ФТТ, 1964, т.6, с.1369.
27. Нитц В.В., Сосновска И., Сосновски Е. — Препринт ОИЯИ 1614, 1964.
28. Нитц В.В., Сосновска И., Сосновски Е., Шапиро Ф.Л. — В сб.: Материалы рабочего совещания по рассеянию медленных нейтронов в кристаллах и жидкостях. ОИЯИ 2081, Дубна, 1965, с.64.
29. Бурас Б., Лециевич Е., Нитц В.В. и др. — *Third United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*, May 1964, report F/Conf. 28/P/488.
30. Holas A. — *Nucleonika*, 1968, vol.13, p.871;
Holas A. et al. — *Nucl. Instrum. Methods*, 1969, vol.69, p.1731.
31. Levitin R.Z., Nitts V.V., Niziol S., Ozerov R.P. — *Solid State Commun.*, 1969, vol.7, p.1665.

32. **Parlinski K., Sudnik-Hryniewicz M., Bajorek A. et al.** — Research Applications of Nuclear Pulsed Systems, IAEA, Vienna, 1967, p.179.
33. **Buras B.** — Research Applications of Nuclear Pulsed Systems, IAEA, Vienna, 1967, p.17.
34. **Natkaniec I., Parlinski K., Janik J.A. et al.** — Neutron Inelastic Scattering, IAEA, Vienna, 1968, vol.I, p.65.
35. **Козлов Ж.А., Парфенов В.А., Сиджимов Б.** — Сообщение ОИЯИ РЗ-7519, Дубна, 1973.
36. **Blahoveshchenskii N.N., Bogoyavlenski I.V. et al.** — Phys. Rev. B, 1994, vol.50.