

СООБЩЕНИЯ  
ОБЪЕДИНЕННОГО  
ИНСТИТУТА  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P3-2000-220

А.М.Балагуров, А.И.Бескровный, Г.М.Миронова,  
А.В.Поле, В.Г.Симкин

ДИФРАКЦИОННЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ  
НА РЕАКТОРЕ **ИБР-2** С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ  
ХОЛОДНОГО ИСТОЧНИКА НЕЙТРОНОВ

2000

## Введение

В конце 1999 г. на реакторе ИБР-2 в ЛНФ ОИЯИ были проведены испытания новой модели холодного метанового замедлителя нейтронов. Эта модель заметно отличается от первого варианта холодного замедлителя, испытанного на ИБР-2 еще в 1994 г. Ее отличительной особенностью является наличие сравнительно толстого слоя Ве, служащего отражателем нейтронов и выполненного в виде гребенки. Новый холодный замедлитель (далее, для краткости, ХЗ) может работать в трех режимах: с твердым метаном при температурах ~30 и ~65 К и без метана при температуре около 300 К. В последнем случае источником тепловых нейтронов является водяной предзамедлитель. Подробное описание конструкции ХЗ и режимов его работы содержится в [1].

Холодный замедлитель устанавливается вблизи активной зоны реактора ИБР-2 со стороны каналов 4, 5 и 6, на которых расположены спектрометр малоуглового рассеяния ЮМО (канал 4), фурье-дифрактометр высокого разрешения ФДВР (канал 5) и многоцелевой дифрактометр ДН-2 (канал 6). В ходе испытаний холодных замедлителей в 1994 и в 1999 гг. на этих установках были проведены многочисленные эксперименты, направленные как на выявление новых возможностей, появляющихся при работе с холодными нейтронами, и определение круга физических задач, им соответствующих, так и для сравнительного анализа условий работы с ХЗ и со штатным водяным гребенчатым замедлителем.

В настоящей работе приведены результаты, полученные на дифрактометрах ФДВР и ДН-2. Вначале обсуждаются некоторые особенности этих дифрактометров, важные для понимания полученных данных. Далее приводятся общие для обоих дифрактометров результаты спектроскопии первичных пучков нейтронов. Затем анализируются данные, полученные в конкретных дифракционных экспериментах различного типа, и делаются выводы. Многочисленные примеры экспериментов, выполненных на ФДВР и ДН-2 при работе с водяным гребенчатым замедлителем, и ссылки на оригинальные публикации можно найти в обзорных статьях [2,3].

## 1. Дифрактометры ФДВР и ДН-2

Фурье-дифрактометр высокого разрешения (ФДВР) является нейтронным спектрометром по времени пролета с использованием быстрого фурье-прерывателя и специальной корреляционной электроники для анализа спектров [4]. В основном он предназначен для структурных экспериментов на поликристаллах с высоким разрешением по межплоскостному расстоянию. Разрешающая способность ( $R=\Delta d/d$ , где  $d$  – межплоскостное расстояние) ФДВР зависит от скорости вращения фурье-прерывателя и, как правило, составляет величину близкую к  $10^{-3}$ . Помимо исследований поликристаллов, ФДВР используется и для измерений дифракционных спектров от монокристаллов, если необходимо его высокое разрешение, и для определения внутренних напряжений в массивных изделиях. На ДН-2, который является

классическим нейтронным дифрактометром по времени пролета на импульсном источнике нейтронов [5] с разрешением  $\Delta d/d \approx 10^{-2}$ , проводятся исследования фазовых переходов в поли- и монокристаллах, двойниковой структуры монокристаллов, твердофазных химических реакций и структурных фазовых переходов в реальном времени, длиннопериодных слоистых структур и др.

На обоих дифрактометрах формирование нейтронного пучка на образце производится с помощью изогнутых зеркальных нейтронотводов с близкими радиусами кривизны. В этом случае использование холодного источника нейтронов приводит к заметному увеличению полного потока нейтронов на образце. Увеличение потока связано как с хорошо известным фактом роста эффективного телесного угла захвата для нейтронов с  $\lambda > \lambda^*$  (в первом приближении телесный угол пропорционален  $\lambda/\lambda^*$ , если отражающими являются только боковые стенки), так и с увеличением пропускания изогнутого нейтронотвода для нейтронов с большой длиной волны. Второй эффект проиллюстрирован на рис.1, где показаны максвелловские распределения для двух температур замедлителя:

$$\Phi(\lambda) = 2\Phi_0(\lambda_0^4/\lambda^5) \exp(-\lambda_0^2/\lambda^2), \quad (1)$$

где  $\Phi_0$  – полный поток нейтронов,  $\lambda_0$  – характерная длина волны, связанная с температурой замедлителя соотношением  $\lambda_0 = 30,81/T^{1/2}$ , если длина волны измерена в  $\text{\AA}$ , а температура  $T$  – в градусах Кельвина.

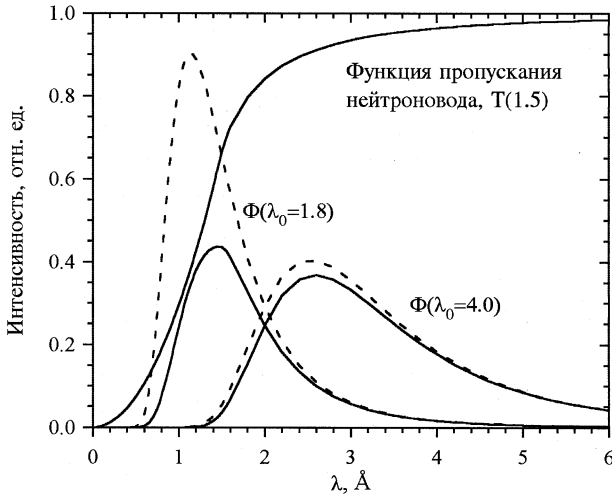


Рис. 1. Максвелловские спектры нейтронов (пунктирные линии) от замедлителя при  $T=300$  К ( $\lambda_0=1,8$   $\text{\AA}$ ) и  $T=60$  К ( $\lambda_0=4,0$   $\text{\AA}$ ) и их изменения (сплошные линии) после прохождения пучка нейтронов через нейтронотвод с функцией пропускания  $T(\lambda^*)=1,5$   $\text{\AA}$

Функция пропускания изогнутого нейтронотвода с хорошим приближением может быть описана формулами

$$\text{Tr}(\lambda)=2/3 \cdot k^2, \text{ при } k \leq 1 \text{ и } \text{Tr}(\lambda)=2/3 \cdot k^2 [1 - (1 - 1/k^2)^{3/2}], \text{ при } k \geq 1, \quad (2)$$

где  $k=\lambda/\lambda^*$  - безразмерная переменная,  $\lambda^*$  - критическая длина волны нейтронновода, связанная с его радиусом кривизны. Уже на качественном уровне видно, что для изогнутого нейтронновода с  $\lambda^* \approx 1,5 \text{ \AA}$ , что близко к критической длине волны нейтронновода ФДВР и ДН-2, происходит сильное ослабление (в  $\sim 2$  раза) полного потока от замедлителя с  $T=300 \text{ K}$ , тогда как поток от холодного замедлителя пропускается практически полностью. Проведенное рассмотрение позволяет заключить, что на спектрометрах, расположенных со стороны холодного замедлителя, формирование нейтронного пучка обязательно должно осуществляться с помощью зеркального нейтронновода.

Еще одним важным обстоятельством, которое необходимо учитывать при анализе дифракционных экспериментов на замедлителях разного типа, является функциональная зависимость разрешающей способности дифрактометров ФДВР и ДН-2. В первом приближении функция разрешения дифрактометра по времени пролета есть

$$R = \Delta d/d = [(\Delta t_0/t)^2 + (\Delta \theta/tg\theta)^2]^{1/2}, \quad (3)$$

где  $\Delta t_0$  - ширина нейтронного импульса от источника,  $t \sim L\lambda \sim Ld$  - полное время пролета нейтрона от источника до детектора,  $L$  - длина пролета,  $\theta$  - угол Брэгга,  $\Delta \theta$  - угловая неопределенность процесса рассеяния. Из (3) следует, что при  $\Delta t_0 = \text{const}$  зависимость  $R(d)$  является гиперболической, т.е. разрешение начинает быстро ухудшаться при уменьшении межплоскостного расстояния. Именно такой случай реализуется на ДН-2 и ФДВР: для ДН-2  $\Delta t_0$  в основном определяется шириной импульса быстрых нейтронов и очень слабо зависит от  $\lambda$ , а для ФДВР  $\Delta t_0$  зависит только от скорости вращения фурье-прерывателя. Анализ разрешающей способности при конкретных значениях ширины импульса ( $\Delta t_0 \approx 300 \text{ мкс}$  для ДН-2 и  $\Delta t_0 \approx 15 \text{ мкс}$  для ФДВР) показывает, что минимальное значение рабочего диапазона по межплоскостному расстоянию составляет около  $1,5 \text{ \AA}$  для ДН-2 и  $0,7 \text{ \AA}$  для ФДВР. При меньших  $d_{\text{нк}}$  перекрытие дифракционных пиков становится слишком большим даже при анализе структур средней сложности. Как будет показано ниже, при работе на больших углах рассеяния (т.е. когда  $\lambda \approx 2d$ ) ХЗ производит достаточно большой поток нейтронов, чтобы регистрировать дифракционные пики в указанной области  $d_{\text{нк}}$ .

Из формулы (3) также следует, что если геометрический вклад мал, то с увеличением  $d_{\text{нк}}$  происходит улучшение разрешающей способности дифрактометра, т.к.  $R \sim 1/d$ . Таким образом, возможность регистрации больших  $d_{\text{нк}}$ , которые становятся доступными при использовании холодного замедлителя, можно рассматривать как эффективное улучшение разрешающей способности. Пример использования этого эффекта при фазовом анализе сложных структур содержится в работе [6].

## 2. Спектры первичного пучка

Измерения спектра первичного пучка от холодного замедлителя проводились с помощью рассеяния на образце ванадия, выполненном в виде призмы с размерами  $6 \times 10 \times 55 \text{ мм}$ . Для контроля измерялись дифракционные спектры стандартного

поликристаллического образца  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . На рис.2 показаны спектры, зарегистрированные при трех разных состояниях ХЗ:  $T=30, 60$  и  $300$  К. В последнем случае метан отсутствовал и замедление нейтронов происходило в водяном предзамедлителе. Помимо смещения максимума спектра в сторону больших  $\lambda$  при понижении температуры, характерной особенностью является сильное выделение спектра в районе В $\alpha$ -границы ( $\lambda=3,96, 3,58, 3,46$  Å), что связано с конструкцией замедлителя. Площадь под спектрами при  $T=30$  и  $60$  К больше, чем площадь под спектром при  $T=300$  К из-за указанного выше резкого уменьшения пропускания нейтронов при малых длинах волн. Сравнение спектров от прототипа холодного замедлителя (1994 г.) и современной модели показано на рис. 3. Видно, что новая модель дает заметный выигрыш как

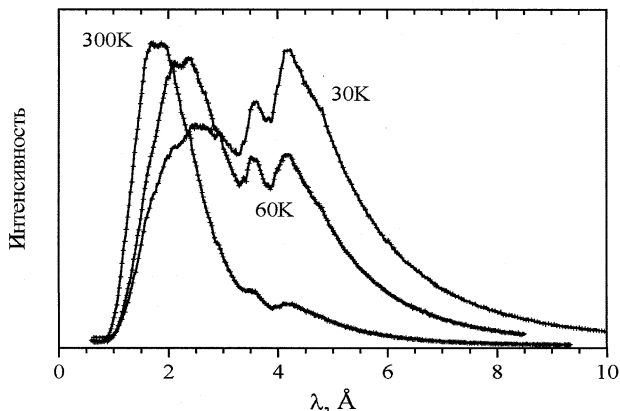


Рис. 2. Спектры, зарегистрированные на ФДВР при трех разных состояниях замедлителя: при температуре метана 30 и 60 К и без метана при температуре водяного предзамедлителя около 300 К

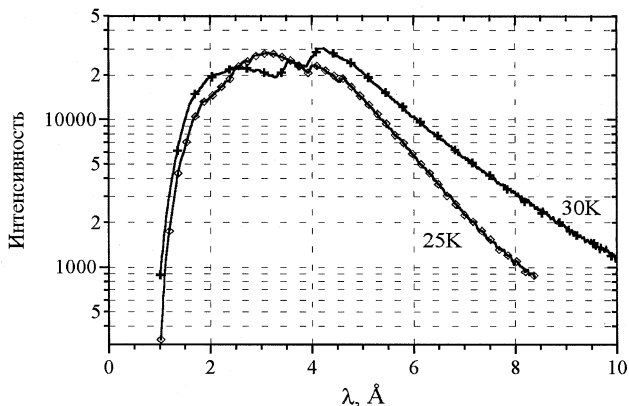


Рис. 3. Сравнение спектров от прототипа холодного замедлителя (1994 г.,  $T=25$  К) и современной модели (1999 г.,  $T=30$  К)

в области  $\lambda < 2,5 \text{ \AA}$ , так и при  $\lambda > 4,0 \text{ \AA}$ , причем при  $\lambda > 8 \text{ \AA}$  выигрыш составляет 3 и более раз. Коэффициент выигрыша (потерь) в потоке нейтронов,  $G$ , при переходе от теплого (300 К) состояния ХЗ к холодному (30 К) показан на рис.4. В диапазоне длин волн от 1 до  $1,8 \text{ \AA}$   $G < 1$ , затем вплоть до  $\lambda = 4 \text{ \AA}$   $G$  растет линейно от 1 до 10, а при  $\lambda = 6,5 \text{ \AA}$  достигает 20. При повышении температуры ХЗ до 70 К спектр заметно изменяется, отношение интенсивностей, измеренных при 30 и 70 К, показано на рис.5.

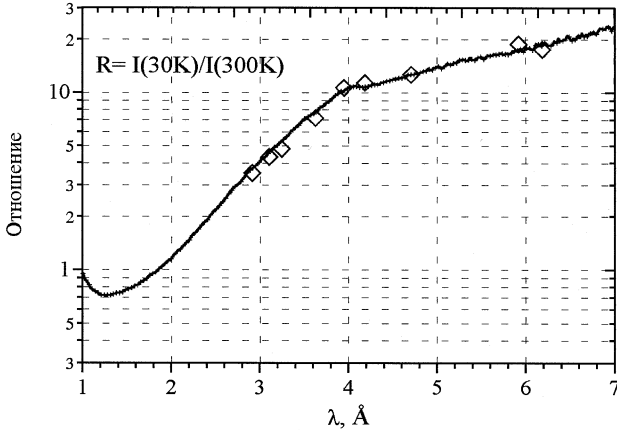


Рис. 4. Коэффициент выигрыша (потерь) в потоке нейтронов на образце при переходе от теплого (300 К) состояния ХЗ к холодному (30 К), определенный по рассеянию на ванадии (сплошная линия) и по дифракционным спектрам (ромбы)

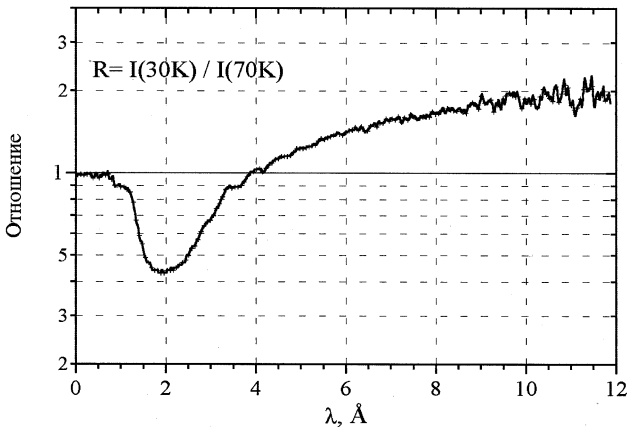


Рис. 5. Отношение потоков нейтронов на образце, измеренных при температурах замедлителя 30 и 70 К

Сравнение потоков от гребенчатого замедлителя и ХЗ в теплом состоянии было измерено с помощью дифракции от  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Соответствующее отношение приведено на рис.6, из которого видно, что гребенчатый замедлитель значительно эффективнее, чем ХЗ в теплом состоянии (без метана) при  $\lambda < 5 \text{ \AA}$ . С учетом этой зависимости фактор G, показанный на рис.5, следует пересчитать. Окончательные кривые показаны на рис.7, они представляют выигрыш от ХЗ при температурах 30 и 70 К по отношению к гребенчатому водяному замедлителю при  $T=300 \text{ K}$ .

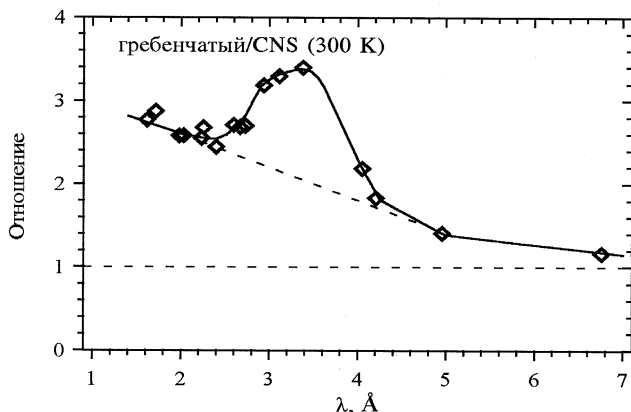


Рис. 6. Сравнение интенсивностей дифракционных пиков  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , измеренных при гребенчатом замедлителе и ХЗ в теплом состоянии (без метана). Линии проведены для удобства восприятия

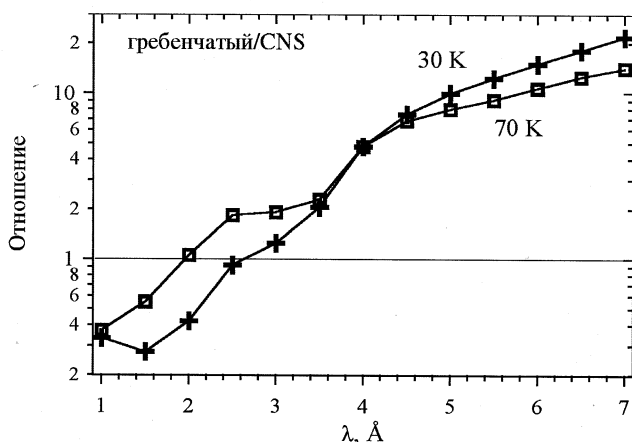


Рис. 7. Коэффициент выигрыша (потерь) в потоке нейтронов на образце при переходе от гребенчатого замедлителя (300 К) к ХЗ при температурах 30 и 70 К

### 3. Дифракционные спектры

Во введении отмечалось, что дифрактометры ФДВР и ДН-2 используются для решения весьма широкого круга задач, которые можно разделить на несколько типов с точки зрения требуемых параметров по разрешению, интенсивности и виду спектрального распределения первичного пучка нейтронов. Более того, даже среди задач, относящихся к одному типу исследования, требуемые от дифрактометра параметры могут существенно различаться в зависимости от конкретной структуры изучаемого кристалла. Например, при уточнении атомной структуры поликристаллов, проводимой, как правило, с помощью метода Ритвельда, традиционно различаются “простые”, “средние” и “сложные” структуры, для анализа которых требуется заметно разный рабочий диапазон межплоскостных расстояний и уровень разрешающей способности дифрактометра. В качестве параметра, характеризующего степень сложности структуры, удобно использовать объем элементарной ячейки кристалла  $V_c$ . Считается, что для простых структур  $V_c \leq 50 \text{ \AA}^3$ , для средних -  $V_c \approx 100 \text{ \AA}^3$ , для сложных -  $V_c \geq 200 \text{ \AA}^3$ , хотя это деление весьма условно, т.к. игнорируются соотношение между параметрами элементарной ячейки и симметрия структуры; оба эти фактора могут сильно влиять на ход анализа. Подробное рассмотрение многочисленных дифракционных задач с точки зрения оптимизации их решения на том или ином дифрактометре или путем изменения параметров дифрактометра не является предметом настоящей работы, поэтому далее приводятся только несколько примеров характерных задач и анализируются возможности их решения при использовании теплого или холодного замедлителя нейтронов.

#### 3.1. Анализ “простых” и “средних” структур

Простые структуры с  $V_c \leq 50 \text{ \AA}^3$  характеризуются небольшими линейными размерами элементарной ячейки, ее высокой симметрией и, соответственно, сравнительно малым числом дифракционных пиков при  $d_{hkl} \geq 0,6 \text{ \AA}$ . Число свободных структурных параметров, как правило, также мало и достаточно измерения нескольких пиков для их уточнения. Число одновременно измеряемых пиков становится более важным при изучении внутренних напряжений. Пример дифракционных спектров от  $\alpha$ -Fe, измеренных при разных температурах замедлителя, приведен на рис.8. Видно, что число наблюдаемых пиков в  $\sim 1,5$  раза больше, если используется теплый замедлитель. Соответственно, анализ таких эффектов, как анизотропия напряжений или влияние текстуры, может быть проведен более полно с теплым пучком нейтронов.

В качестве структуры средней сложности рассмотрим один из дифракционных стандартов – поликристалл  $\text{Al}_2\text{O}_3$  с  $V_c = 85 \text{ \AA}^3$ . Его дифракционные спектры, измеренные при температурах замедлителя 25 и 300 К, приведены на рис.9. На первый взгляд кажется, что спектр, измеренный при  $T=300 \text{ К}$ , более пригоден для структурного анализа. Однако после выполнения необходимой процедуры нормировки на эффективный спектр (рис.10) становится очевидно, что оба спектра более-менее эквивалентны с точки зрения качества статистики и, следовательно, возможного качества структурного анализа.

Это подтверждается результатами обработки по методу Ритвельда представленных



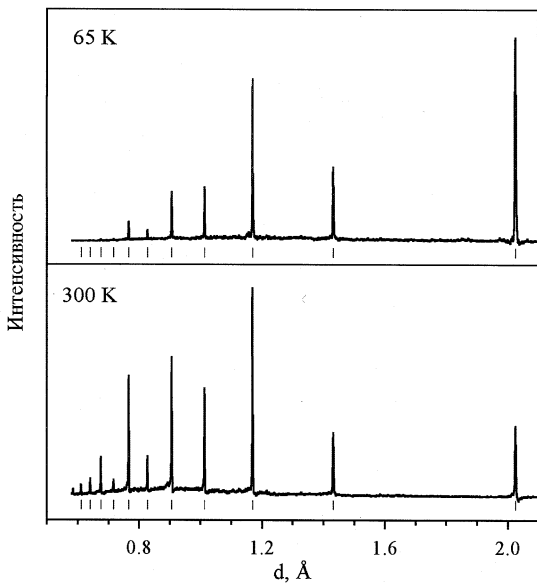


Рис. 8. Сравнение дифракционных спектров  $\alpha$ -Fe ( $V_c=23,5 \text{ \AA}^3$ ), измеренных при температурах замедлителя 300 (внизу) и 65 К (вверху)

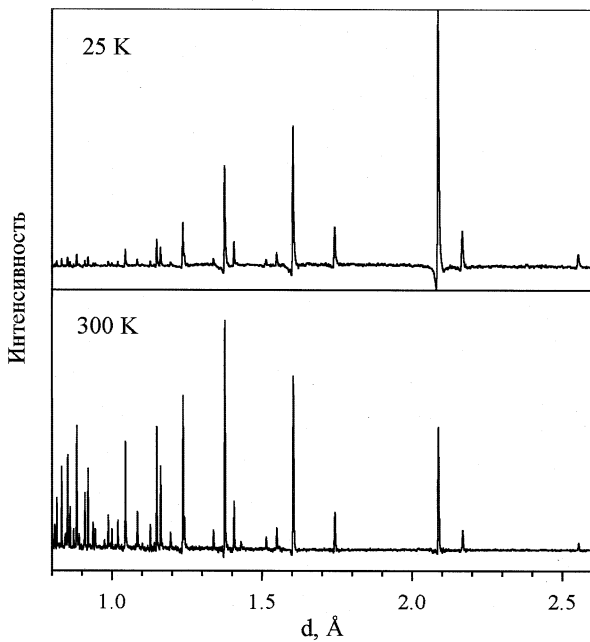


Рис. 9. Сравнение дифракционных спектров  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , измеренных при температурах замедлителя 300 (внизу) и 25 К (вверху)

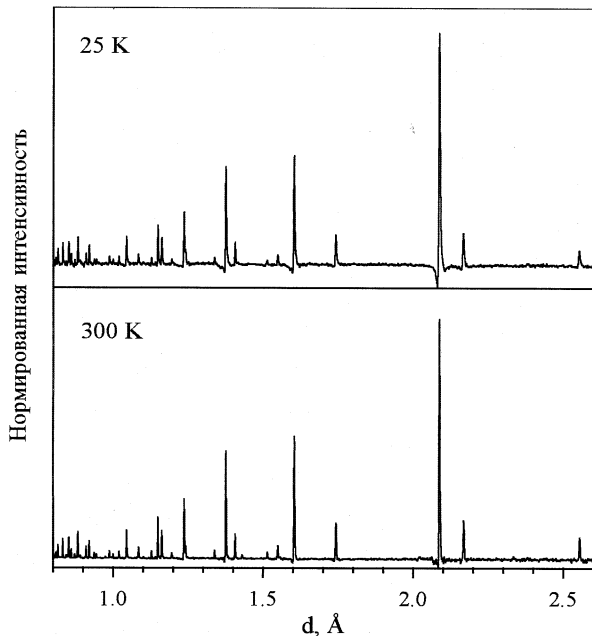


Рис. 10. Сравнение дифракционных спектров  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , измеренных при температурах замедлителя 300 (внизу) и 25 К (вверху), после процедуры нормирования на эффективный спектр

Табл. 1. Сравнение уточнений структуры стандартного образца  $\text{Al}_2\text{O}_3$  для  $d=0,75 - 2,22 \text{ \AA}$ : (1) – A.Hewat, I.Bailey, Nucl. Instr. & Methods, 137 (1976) 463; (2) – гребенчатый замедлитель ( $T=300 \text{ K}$ ); (3) – X3 без метана ( $T=300 \text{ K}$ ); (4) – X3 при  $T=35 \text{ K}$ . Приведены параметры элементарной ячейки для пр. гр.  $R\bar{3}c$ , координаты атомов, стандартные критерии качества обработки и эффективное число измеренных пиков. В строке ниже значений координат приведены их отклонения от литературных данных

Параметр	1	2	3	4
$a, \text{ \AA}$	5,13448 (1)	5,13144 (1)	5,12921(2)	5,12924 (1)
$\alpha^\circ$	55,270 (1)	55,270 (1)	55,270 (1)	55,270 (1)
Al, x	0,3522 (1)	0,3521 (1)	0,3525 (1)	0,3525 (1)
		0,0001	-0,0003	-0,0003
O, x	0,5564 (1)	0,5559 (1)	0,5567 (2)	0,5558 (2)
		0,0005	-0,0003	0,0006
$\chi^2$	5,9	2,2	1,6	2,2
$R_w$		11,0	13,1	12,9
$N_{\text{eff}}$		54	53	54

спектров, а также спектра, измеренного с гребенчатым замедлителем, результаты которой даны в табл. 1. Абсолютные отклонения структурных параметров Al и O от литературных значений не превышают тысячных ангстрема, критерий  $\chi^2$ , весовой R-

фактор и число эффективно измеренных дифракционных пиков примерно совпадают для всех трех вариантов. Отсюда следует, что структуры средней сложности с примерно одинаковой эффективностью могут изучаться при любом типе замедлителя нейтронов.

### 3.2. Анализ “сложных” структур

Дифракционные спектры соединения  $\text{YbFeO}_3$  с  $V_c \approx 220 \text{ \AA}^3$  ( $a=5,56$ ,  $b=7,56$ ,  $c=5,23 \text{ \AA}$ , пр. гр.  $R\bar{3}m$ ), измеренные при температурах замедлителя 30 и 300 К, показаны на рис.11, а результаты их структурного анализа представлены на рис.12.

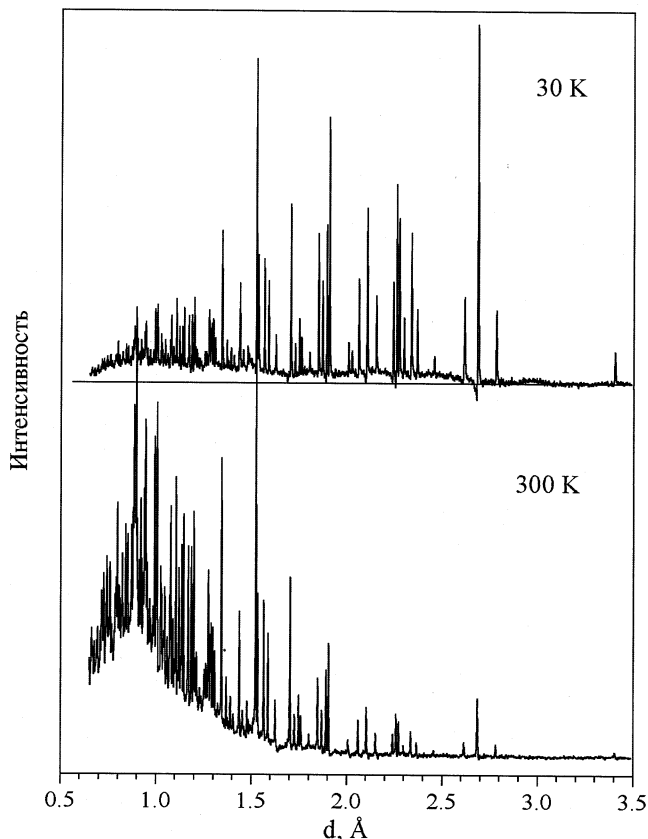


Рис. 11. Сравнение дифракционных спектров  $\text{YbFeO}_3$  ( $V_c \approx 220 \text{ \AA}^3$ ), измеренных при температурах замедлителя 300 (внизу) и 30 К (вверху)

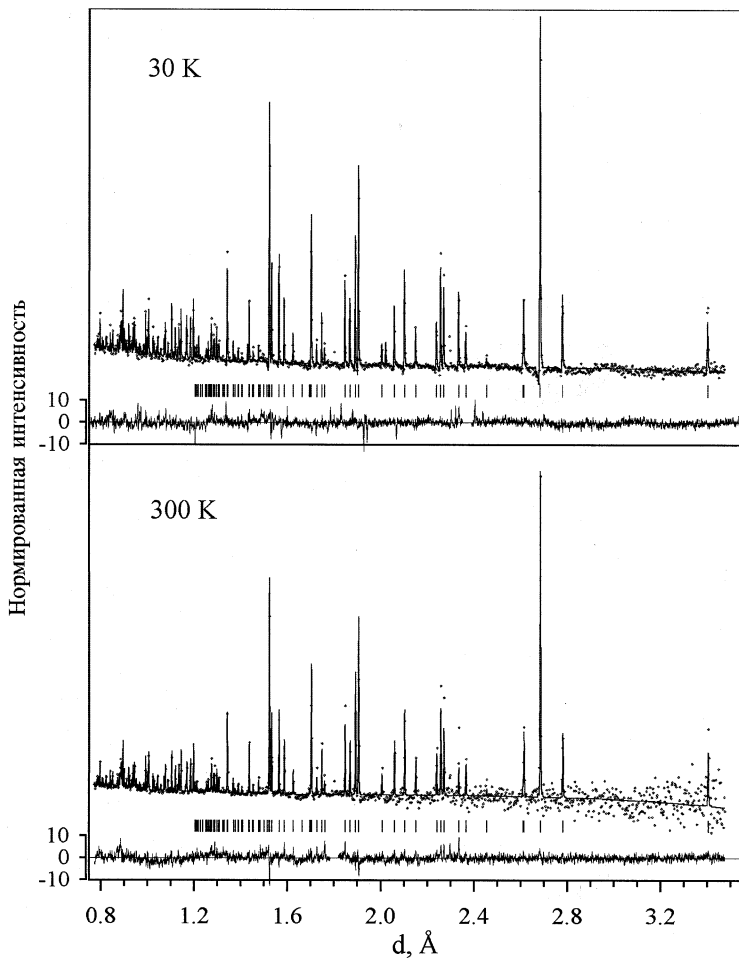


Рис. 12. Результат обработки по методу Ритвельда спектра  $\text{YbFeO}_3$  для случая гребенчатого (внизу) и холодного ( $T=30\text{ K}$ ) замедлителей

Видно, что при теплом замедлителе статистический разброс точек в области больших  $d_{\text{hkl}}$  слишком велик и реально обработку спектра можно вести до  $d_{\text{hkl}} \approx 2,4\text{ \AA}$ . Наоборот, в случае холодного замедлителя в обработку имеет смысл включать участок спектра начиная с  $d_{\text{hkl}} \approx 1,0\text{ \AA}$ , хотя коротковолновая часть спектра также может учитываться. Сравнение различных вариантов обработки приведено в табл. 2, где представлены данные из литературы и результаты обработки для двух разных интервалов  $d_{\text{hkl}}$ , для теплого и холодного замедлителей. Хотя, в принципе, все 4 варианта не очень сильно

отличаются друг от друга (координаты атомов и тепловые факторы определяются с примерно одинаковой точностью и только точность параметров элементарной ячейки заметно, в 1,5 – 2 раза, улучшается при расширении интервала  $d_{\text{hkl}}$ ), обработка спектра, измеренного на холодном замедлителе, в максимальном интервале  $d_{\text{hkl}} \approx 0,8 - 3,5 \text{ \AA}$  дает наиболее стабильный с точки зрения вариации начальных условий и в среднем наиболее близкий к литературным данным результат.

Табл. 2. Сравнение результатов уточнения структуры  $\text{YbFeO}_3$  по дифракционным спектрам, измеренным с теплым (штатный гребенчатый) и холодным ( $T=30 \text{ K}$ ) замедлителями. Во 2-й колонке данные из статьи М.Мarezio et al., Acta Cryst., B26 (1970) 2008. В строчке, ниже значений параметра, приведены разности полученного результата и данных из статьи Marezio et al.

Параметр	Из статьи Marezio et al.	Гребенч. зам. $d=0,77 - 2,20$ $\text{ \AA}$	Гребенч. зам. $d=0,77 - 3,48$ $\text{ \AA}$	Метан. зам. $d=1,07 - 3,48$ $\text{ \AA}$	Метан. зам. $d=0,77 - 3,48$ $\text{ \AA}$
a, $\text{ \AA}$	5,557	5,56485(3)	5,56484(3)	5,56471(2)	5,56474(2)
b, $\text{ \AA}$	7,570	7,57003(4)	7,57000(4)	7,57002(3)	7,56996(2)
c, $\text{ \AA}$	5,233	5,23177(2)	5,23176(2)	5,23181(2)	5,23178(2)
Yb, x	0,0708	0,0722(2)	0,0722(2)	0,0705(2)	0,0711(2)
		-0,0014	-0,0014	0,0003	-0,0003
Yb, z	0,9806	0,9785(2)	0,9784(2)	0,9783(2)	0,9781(2)
		0,0021	0,0022	0,0023	0,0025
Fe, B, $\text{ \AA}^2$	-	0,50(2)	0,43(2)	1,17(4)	0,55(3)
O1, x	0,4537	0,4542(4)	0,4547(4)	0,4560(4)	0,4542(4)
		-0,0005	-0,0010	-0,0023	-0,0005
O1, z	0,1169	0,1146(3)	0,1151(3)	0,1183(3)	0,1172(3)
		0,0023	0,00018	-0,0014	-0,0003
O2, x	0,6923	0,6936(3)	0,6942(3)	0,6913(3)	0,6918(3)
		-0,0013	-0,0019	0,0010	0,0005
O2, y	-0,0599	-0,0594(2)	-0,0601(2)	-0,0640(2)	-0,0639(2)
		-0,0005	0,0002	0,0041	0,0040
O2, z	0,3114	0,3117(3)	0,3116(3)	0,3124(3)	0,3117(3)
		-0,0003	-0,0002	-0,0010	-0,0003
$\chi^2$		3,0	2,4	2,8	3,0
$R_w$		10,6	13,1	14,8	15,1

Для более сложных структур, безусловно, лучший результат получается при использовании холодного замедлителя в связи с тем, что удастся измерить большое число пиков при  $d_{\text{hkl}} \approx 2 - 3 \text{ \AA}$ , которые имеют слишком малую статистику на теплом замедлителе, а уменьшение интенсивности в области малых  $d_{\text{hkl}}$  оказывается незначительным. Например, на рис.13 приведены дифракционные спектры высокотемпературного сверхпроводника  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_8$ , имеющего объем элементарной ячейки  $V_c \approx 400 \text{ \AA}^3$ , измеренные при температурах замедлителя 30 и 300 K. Эффективное число дифракционных пиков, измеренных в диапазоне 1 – 3,7  $\text{ \AA}$ , составляет  $N_{\text{eff}}=81$  и 68 для этих двух температур.

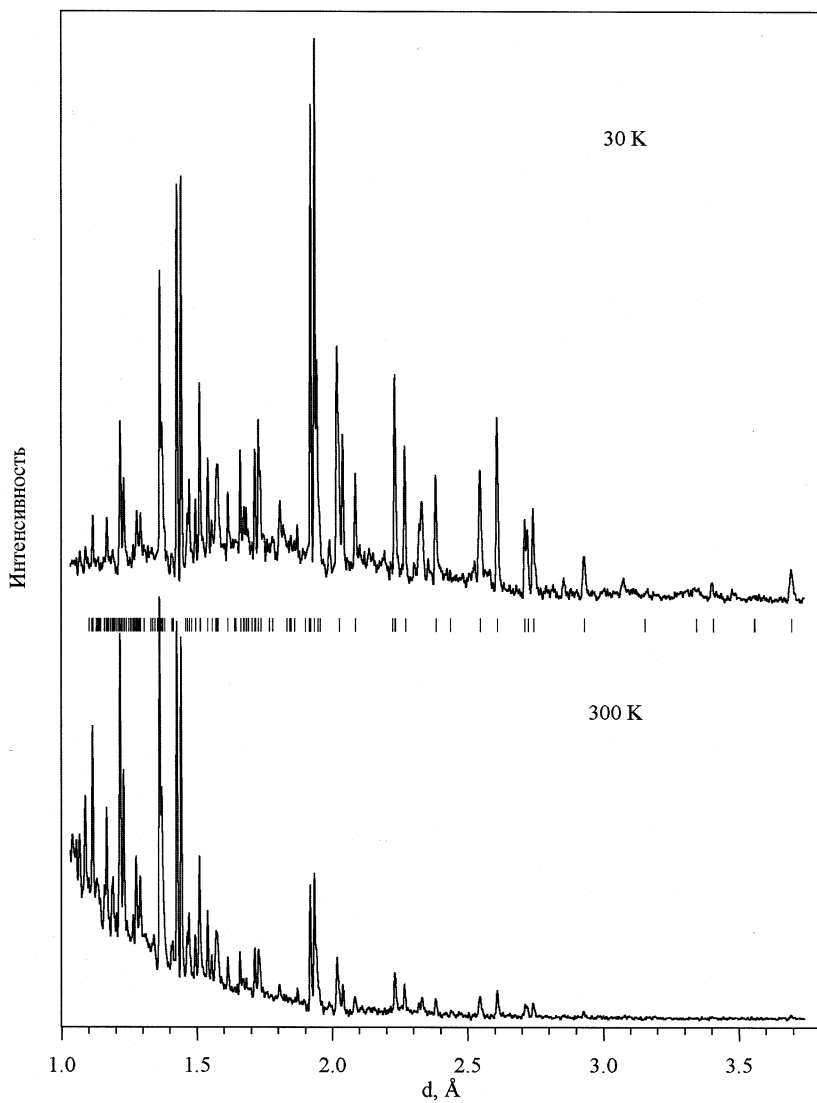


Рис. 13. Сравнение дифракционных спектров  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  ( $V_c \approx 400 \text{ \AA}^3$ ), измеренных при температурах замедлителя 300 (внизу) и 25 К (вверху)

### 3.3. Анализ магнитных структур и идентификация фаз

Холодный замедлитель даст возможность измерять дифракционные пики в области больших  $d_{\text{hk}}$  (по крайней мере, до 7 Å) при больших углах рассеяния, т.е. с достаточно хорошим разрешением, что исключительно важно при изучении магнитных структур, анализа многофазных образцов и регистрации малых искажений кристаллографической симметрии. Соответствующие примеры представлены на рис.14

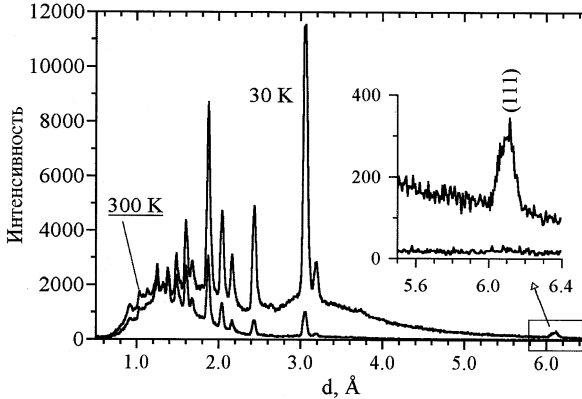


Рис. 14. Сравнение дифракционных спектров  $\text{Bi}_{1.7}\text{Mg}_{0.3}\text{Nb}_{0.7}\text{O}_{6.5}$  ( $V_c \approx 1180 \text{ \AA}^3$ ), измеренных при температурах замедлителя 300 и 30 К в режиме низкого разрешения. Пик (111) не виден на уровне фона при температуре замедлителя 300 К

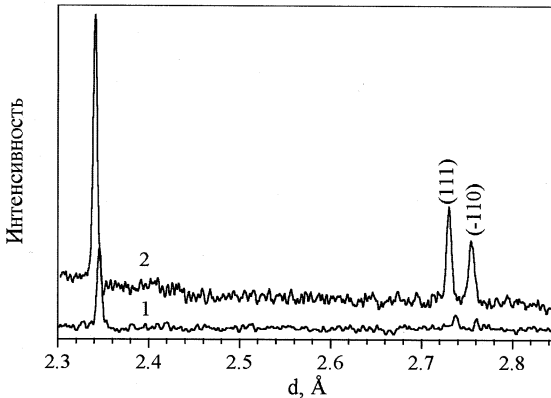


Рис. 15. Дифракционные спектры  $\text{La}_{0.83}\text{Sr}_{0.17}\text{MnO}_3$  (температура образца 8 К) в области больших  $d_{\text{hk}}$ , измеренные за одинаковое время на гребенчатом замедлителе (кривая 1) и X3 при  $T=60 \text{ К}$  (кривая 2). Дифракционные пики (111) и (-110) связаны с ферромагнитным упорядочением магнитных моментов Mn

(структура  $\text{Bi}_{1.7}\text{Mg}_{0.3}\text{Nb}_{0.7}\text{O}_{6.5}$ ,  $V_c=1179 \text{ \AA}^3$ , пр. гр.  $Fd3m$ , для идентификации пространственной группы которой важно было зарегистрировать пик (111) с  $d=6,1 \text{ \AA}$ ), рис.15 (манганит  $\text{La}_{0.83}\text{Sr}_{0.17}\text{MnO}_3$ ,  $V_c=115,7 \text{ \AA}^3$ , пр. гр.  $R\bar{3}m$ , ферромагнитные пики которого удалось уверенно зарегистрировать только при измерении на ФДВР с высоким разрешением и на холодном замедлителе) и рис.16 ( $\text{SrFeO}_{2.79}$ , в котором высокое разрешение при больших  $d_{hkl}$  и холодный замедлитель помогли зарегистрировать тетрагональное искажение перовскитной структуры).

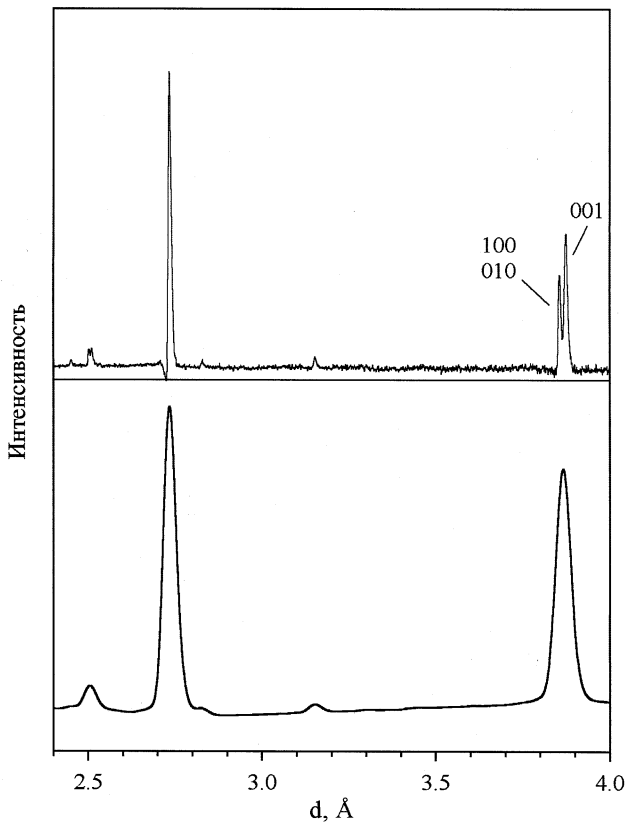


Рис. 16. Дифракционные спектры  $\text{SrFeO}_{2.79}$ , измеренные в области больших  $d_{hkl}$  в режиме среднего (внизу) и высокого (вверху) разрешения дифрактометра ФДВР. Расщепление пиков (100)/(010) и (001), связанное с тетрагональным искажением кубической решетки, видно только при высоком разрешении дифрактометра. При работе с теплым замедлителем область  $d_{hkl}>3 \text{ \AA}$  не доступна на ФДВР



### 3.4. Эксперименты в режиме реального времени

Типичным примером нейтронографического эксперимента в реальном времени является изучение химических реакций в твердой фазе. По сравнению с дифракцией рентгеновского или синхротронного излучений, также широко применяемых для этой цели, нейтронография в реальном времени сохраняет все достоинства, присущие нейтронам: высокую чувствительность к легким атомам, возможность изотопного контрастирования и т.д. Часто при постановке экспериментов в реальном времени немаловажным фактором является высокая проникающая способность нейтронов.

В работе [7] в реальном времени был исследован процесс синтеза сверхпроводника  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  (Y-123) из исходных компонентов  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{BaCO}_3$  и  $\text{CuO}$  и было показано, что образование конечного продукта идет через промежуточные фазы:  $\text{BaCuO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{Cu}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Y}_2\text{BaCuO}_5$ . Эксперимент был выполнен с длительностью кадра 5 мин,

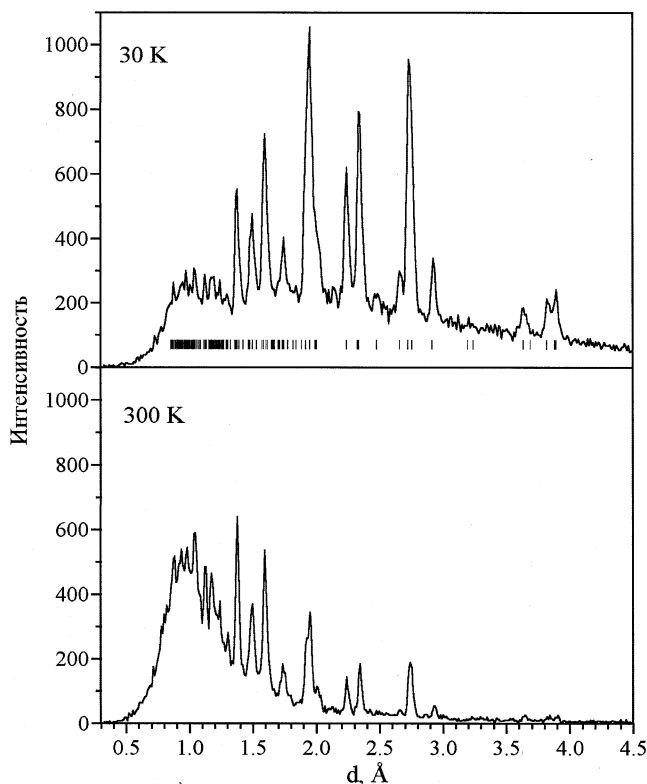


Рис. 17. Сравнение дифракционных спектров  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  ( $V_c \approx 170 \text{\AA}^3$ ), измеренных при температурах замедлителя 300 (внизу) и 30 К (вверху) за 1 минуту. Дифракционные пики, связанные с наличием сверхстехиометрического кислорода в области 3,5 – 4,0  $\text{\AA}$ , практически не видны при работе с теплым замедлителем

идентификация фаз проводилась в интервале  $d_{hkl}$  от 2 до 4 Å. На рис.17 показаны дифракционные спектры  $YBa_2Cu_3O_{6.5}$ , измеренные в аналогичных работе [7] условиях, но за время 1 мин на теплом гребенчатом и холодном замедлителях. Значительное увеличение статистики в области больших  $d_{hkl}$  позволило почти в два раза улучшить точность определения кислородного индекса.

#### 4. Заключение

Основной вывод, который может быть сделан из представленных результатов, состоит в том, что для подавляющего большинства задач, решаемых на дифрактометрах ФДВР и ДН-2, холодный метановый замедлитель предоставляет более оптимальные условия, чем штатный водяной гребенчатый замедлитель. Наиболее существенными общими предпосылками для этого является увеличение полного потока нейтронов от ХЗ в  $\sim 2$  раза по сравнению с потоком от гребенчатого замедлителя и сдвиг рабочего диапазона  $d_{hkl}$  в область максимальной разрешающей способности дифрактометров. Особенно сильно эти факторы проявляются при анализе сложных кристаллических и магнитных структур на ФДВР и в экспериментах с длиннопериодными структурами и в реальном времени на ДН-2. Анализ структур средней сложности может быть выполнен с примерно одинаковым успехом на обоих типах замедлителей. Эксперименты с простыми структурами и измерения внутренних напряжений в простых соединениях лучше могут быть проведены на теплом пучке нейтронов. Перечисленные и некоторые другие задачи собраны в табл. 3, где на основе проведенного анализа указаны приоритеты их решения.

Табл. 3. Некоторые дифракционные задачи, решение которых возможно на дифрактометрах ФДВР и ДН-2 при работе с теплым или холодным замедлителями нейтронов. Степень разрешимости задачи условно выражена числом знаков + в соответствующей колонке

Тема / Метод	Теплый замедлитель	Холодный замедлитель	Дифрактометр
Автоиндексация	+	+++	ФДВР
Уточнение структур с $V_c \leq 50 \text{ \AA}^3$	+++	++	ДН-2
Уточнение структур с $V_c \approx 100 \text{ \AA}^3$	+++	+++	ФДВР ДН-2
Уточнение структур с $V_c \geq 200 \text{ \AA}^3$	+	+++	ФДВР
Фазовые переходы	++	+++	ФДВР ДН-2
Внутренние напряжения	+++	++	ФДВР
Магнитные структуры	+	+++	ДН-2 ФДВР
Количественный фазовый анализ	+	+++	ФДВР ДН-2
Эксперименты в реальном времени	++	+++	ДН-2

Авторы благодарны А.А.Белякову, Д.А.Корнееву и Е.П.Шабалину за многочисленные и полезные консультации и В.Л.Аксенову за поддержку работы.

Работа выполнена при финансовой поддержке фонда РФФИ, проекты 00-02-16736 и 00-02-16758.

### Литература

1. E.P.Shabalin, A.A.Beliakov, In Proc. of the German-Russian User Meeting. JINR, Dubna, 1998, p.25.
2. В.Л.Аксенов, А.М.Балагуров, УФН, 1996, т.166, с.955.
3. А.М.Балагуров, Поверхность, 1997, т.7, с.123.
4. V.L.Aksenov, A.M.Balagurov, V.G.Simkin et al., J. of Neutron Research, 1997, v.5, p. 181.
5. A.M.Balagurov, Physica B, 1991, v.174, p.542.
6. G.M.Mironova, FLNP Annual Report, 1994, JINR Dubna, 95-137, 1995, p.56.
7. А.М.Балагуров, Г.М.Миронова, Сверхпроводимость, 1990, т.3, с.541.

---

Рукопись поступила в издательский отдел  
21 сентября 2000 года.

Балагуров А.М. и др.

P3-2000-220

Дифракционные исследования на реакторе ИБР-2  
с использованием холодного источника нейтронов

На реакторе ИБР-2 в ЛНФ ОИЯИ проведены испытания метанового замедлителя, позволяющего оптимизировать выполнение исследований с холодными нейтронами. В работе представлены результаты экспериментов на нейтронных дифрактометрах ФДВР и ДН-2, расположенных на реакторе ИБР-2 со стороны метанового замедлителя. Проведено сравнение с результатами, получаемыми с использованием штатного гребенчатого водяного замедлителя. Дан анализ перспектив применения холодного источника для различных типов нейтронографических экспериментов, в том числе для исследований атомных и магнитных структур различной степени сложности и исследований быстрых процессов в реальном времени. Показано, что для подавляющего большинства задач, решаемых на дифрактометрах ФДВР и ДН-2, холодный метановый замедлитель предоставляет лучшие условия, чем штатный водяной замедлитель.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики им. И.М.Франка ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2000

Перевод авторов

Balagurov A.M. et al.

P3-2000-220

Diffraction Experiments at the IBR-2 Pulsed Reactor  
with Methane Cold Neutron Source

A new methane cold neutron source has been tested at the IBR-2 pulsed reactor at the Frank Laboratory of Neutron Physics. In a paper the results of experiments at neutron diffractometers HRFD and DN-2 which are placed at the IBR-2 from the methane moderator side are given. A comparison with the results obtained with the conventional water comb-like moderator is performed. The perspectives of the cold source for various kinds of neutron diffraction experiments, including atomic and magnetic structural analysis and real time experiments are discussed. It is shown, that for a huge number of the experiments which are performing at both HRFD and DN-2 the methane cold neutron source provides the better conditions than water comb-like moderator.

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

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2000

Редактор Е.Ю.Шаталова. Макет Н.А.Киселевой

Подписано в печать 17.10.2000  
Формат 60 × 90/16. Офсетная печать. Уч.-изд. листов 1,52  
Тираж 300. Заказ 52291. Цена 1 р. 83 к.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований  
Дубна Московской области