

На правах рукописи

ЛИТВИН ВАСИЛИЙ СЕРГЕЕВИЧ

**НЕЙТРОННЫЙ ВРЕМЯПРОЛЕТНЫЙ
РЕФЛЕКТОМЕТР-МАЛОУГЛОВОЙ
СПЕКТРОМЕТР «ГОРИЗОНТ» С ВЕРТИКАЛЬНОЙ
ПЛОСКОСТЬЮ РАССЕЯНИЯ НА ИСТОЧНИКЕ
ИН-06 ИЯИ РАН**

01.04.01- Приборы и методы экспериментальной физики

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

МОСКВА — 2013

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте ядерных исследований Российской академии наук (ИЯИ РАН)

Научные руководители:

доктор физико-математических наук
Э. А. Коптелов, ИЯИ РАН

кандидат физико-математических наук
Р. А. Садыков, ИЯИ РАН

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук, нач. сектора М.В. Авдеев
Лаборатория нейтронной физики им. И.М. Франка
Объединенный институт ядерных исследований

кандидат физико-математических наук, доцент Н.О. Елютин
Национальный Исследовательский Ядерный Университет «МИФИ»

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт кристаллографии Российской академии наук

Защита диссертации состоится «___» _____ 201 г. в ___ часов
на заседании диссертационного совета Д 002.119.01

Федерального государственного бюджетного учреждения науки
Института ядерных исследований Российской академии наук

Адрес: 117312, г. Москва, проспект 60-летия Октября, д.7а.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИЯИ РАН.

Автореферат разослан «___» _____ 201 г.

Ученый секретарь диссертационного совета ИЯИ РАН,
кандидат физико-математических наук

Б.А. Тулупов

Общая характеристика работы

Актуальность темы диссертации. Методы нейтронной рефлектометрии и малоуглового рассеяния нейтронов (МУРН) являются на сегодняшний день весьма востребованными, т.к. позволяют исследовать структуру вещества в масштабах порядка 1–1000 нм. Импульсные источники нейтронов на базе линейных ускорителей протонов являются в настоящее время наиболее перспективными, т.к. позволяют достичь максимальной плотности потока нейтронов, а также являются экологически безопасными вследствие отсутствия делящихся материалов в генерирующих нейтроны мишенях.

Цель и задачи работы

Целью данной работы являлось: создание времяпролетного нейтронного рефлектометра-малоуглового спектрометра «Горизонт» на импульсном источнике нейтронов «ИН-06» в ИЯИ РАН; моделирование оптической схемы установки методом Монте-Карло, оптимизация параметров и режимов измерения; получение экспериментальных спектров нейтронов и профилей пучка, сравнение их с результатами модельных расчетов; разработка двухкоординатных позиционно-чувствительных детекторов (ПЧД) нейтронов для установки «Горизонт», позволяющих проводить измерения по времяпролетной методике.

Научная новизна

- 1) Установка «Горизонт» является первым, созданным в России, времяпролетным нейтронным рефлектометром с вертикальной плоскостью рассеяния, вторая подобная установка создается на реакторе ИБР-2 в ОИЯИ.
- 2) На большинстве нейтронных рефлектометров и малоугловых спектрометров установлены многопроволочные пропорциональные камеры либо пропорциональные счетчики с гелием-3 под давлением до 10 атм. В рамках данной работы были разработаны двухкоординатные детекторы нейтронов двух типов: сцинтилляционного с использованием лавинных фотодиодов и многопроволочной пропорциональной камеры с конвертером нейтронов из твердого бора-10.
- 3) Впервые методами малоуглового рассеяния нейтронов и нейтронной дифракции исследована структура немагнитного сплава 40ХНЮ (Ni 58%, Cr 39%, Al 3%) в зависимости от твердости. Также методом малоуглового рассеяния нейтронов был исследован процесс эволюции надатомной структуры сплава в процессе отжига, ведущего к повышению твердости этого сплава.

Основные результаты, представленные к защите

На импульсном источнике нейтронов ИН-06 создан нейтронный времяпролетный рефлектометр-малоугловой спектрометр с вертикальной плоскостью рассеяния. Концепция установки была предложена коллективом авторов из ИЯИ РАН и ПИЯФ. В ПИЯФ по заданию ИЯИ РАН были разработаны изготовлены основные узлы установки «Горизонт». Проведено моделирование методом Монте-Карло оптической системы установки. Получены модельные и экспериментальные спектры нейтронов. Исследованы возможные конфигурации установки. Разработаны двухкоординатные детекторы нейтронов. Показана возможность создания двухкоординатного сцинтилляционного детектора с использованием лавинных фотодиодов и спектросмещающих волокон. Получены спектры малоуглового рассеяния нейтронов и нейтронные дифрактограммы на сплаве 40ХНЮ (Ni-58%, Cr-39%, Al-3%). Показано, что термообработка сплава приводит к образованию наночастиц, поэтому сплав с максимальной твердостью обладает максимальным сечением рассеяния нейтронов в области переданных импульсов до $0,1 \text{ \AA}^{-1}$.

Научная и практическая ценность работы.

1) Установка «Горизонт» позволит проводить исследования надатомной структуры вещества методами нейтронной рефлектометрии и малоуглового рассеяния нейтронов. Благодаря вертикальной плоскости рассеяния установка позволяет исследовать жидкие образцы методом нейтронной рефлектометрии.

2) Разработанные двухкоординатные детекторы тепловых нейтронов позволяют избежать трудностей, с которыми сталкиваются при эксплуатации гелиевых детекторов – высокое давление рабочего газа и, как следствие, утечки гелия-3, необходимость устанавливать толстое входное окно, на котором неизбежно ослабление потока нейтронов. Кроме того, в настоящее время в мире остро стоит проблема дефицита гелия-3. Данные детекторы могут применяться на времяпролетных нейтронных рефлектометрах, малоугловых спектрометрах и других установках.

3) Впервые получены нейтронные дифрактограммы на импульсном источнике нейтронов «РАДЭКС» и установлена возможность проведения на источнике исследований на тепловых и эпитепловых нейтронах.

4) Источники «ИН-06» и «РАДЭКС» являются единственными в России высокоинтенсивными импульсными источниками нейтронов на базе ускорителя протонов. Опыт создания установок для исследования в области физики конденсированных сред, в частности малоугловых установок и нейтронных рефлектометров, на источниках данного типа будет полезен для дальнейшего создания и развития подобных установок.

5) Были измерены сечения малоуглового рассеяния нейтронов сплавом 40ХНЮ и обнаружена связь между наличием наночастиц с характерным размером ~ 100 нм и твердостью данного сплава. Данный сплав сочетает твердость стали и низкую магнитную восприимчивость (не более 0,003 СГСМ/г). Полученные результаты следует учитывать при проектировании и использовании элементов нейтронграфических установок из данного сплава, например, камер высокого давления. Полученные нейтроннографические данные дополняют имеющиеся данные рентгенографических исследований и электронной микроскопии и могут быть использованы при изготовлении изделий из данного сплава.

Апробация работы. Основные результаты работы докладывались на Международных и Национальных конференциях: ЯДРО2008 (Москва, 2008), ЯДРО2009 (Чебоксары, 2009), на VII и VIII Национальной конференции РСНЭ-НБИК (Москва, 2009 и 2011), на III и VI международной конференции «Деформация и разрушение материалов и наноматериалов» (Москва, 2009 и 2011) и на 5-й Европейской конференции по рассеянию нейтронов ECNS-2011 (Прага, 2011).

Публикации. Основные результаты научных исследований по теме диссертации содержатся в 6 публикациях в реферируемых научных журналах, из них 4 в журналах, рекомендованных ВАК.

Структура и объем диссертационной работы Работа состоит из введения, пяти глав, заключения и приложений, содержит 155 страниц, 89 рисунков, 15 таблиц, список литературы из 158 наименований.

Личный вклад диссертанта Все результаты настоящей работы были получены автором. Автор внес большой вклад в создание установки. Автор принимал активное участие в разработке и монтаже установки. Автором разработан ряд ключевых элементов установки: коллиматор, легкий шиббер, ловушка прямого пучка. Вклад автора был определяющим в разработке двухкоординатных детекторов нейтронов, изготовлении и испытании их прототипов. Автором выполнены модельные расчеты оптической схемы установки. Также автором проведены испытания установки и получены экспериментальные спектры нейтронов. Автор принимал участие в экспериментах по исследованию структуры сплава 40ХНЮ методами нейтронной дифракции (на источнике «РАДЭКС») и малоуглового рассеяния нейтронов и самостоятельно провел анализ полученных экспериментальных данных.

Содержание работы

Во введении обосновывается актуальность, сформулирована цель и основные задачи диссертации. Изложена научная новизна и практическая ценность полученных результатов работы.

В первой главе Изложены основы нейтронной рефлектометрии и МУРН. Сделан обзор существующих установок, проведен сравнительный анализ их характеристик.

Во второй главе описана установка, а также нейтронный источник.

Установка «Горизонт» (рис. 1) состоит из зеркального изогнутого нейтронотода, установленного в канале биологической защиты источника ИН-06, и оптической скамьи, на которой размещены три подвижные платформы, укомплектованные двумя автоматизированными коллимирующими щелевыми устройствами и отклоняющим суперзеркалом. За оптической скамьей установлен виброустойчивый стол образца с гониометром. К столу образца на шарнирах крепится консоль длиной 4 м, на конце которой устанавливается детектор нейтронов. На консоли установлена вакуумируемая труба, которая позволяет избежать рассеяния нейтронов в воздухе.

Нейтронотод имеет зеркальный канал, изогнутый в вертикальной плоскости, длиной 7000 мм с сечением 70 мм (ширина) x 10 мм (высота) и радиусом кривизны 520 м. Канал нейтронотода состоит из 14 плоских секций, расположенных под углом относительно друг друга. Верхние и боковые стенки канала представляют собой многослойные NiMo/Ti-зеркала с $m=2$ (т. е. критический угол полного отражения нейтронов с длиной волны 1 Å в 2 раза больше, чем у природного никеля), а нижние стенки – Ni-зеркала. Нейтронотод обеспечивает увеличение плотности потока тепловых и холодных нейтронов и не пропускает нейтроны с длиной волны менее 1 Å (рис. 3). Таким образом, улучшаются фоновые условия в экспериментальной зоне. Коллимирующие щелевые устройства позволяют формировать падающий на образец пучок нейтронов по высоте в пределах 0-12 мм и по ширине в пределах 0-70 мм с точностью позиционирования не менее 0,005 мм. Отклоняющее суперзеркало – многослойное NiMo/TiZr с $m=2$ – позволяет задавать угол падения нейтронного пучка на образец с точностью $\pm 5''$. При выходе из нейтронотода пучок нейтронов наклонен вниз и образует с горизонтальной плоскостью угол $0,77^\circ$. Отклоняющее суперзеркало позволяет увеличить угол падения пучка на образец. Это необходимо для исследований жидких образцов, когда плоскость образца должна оставаться горизонтальной. Узел образца позволяет перемещать образец в 3-х взаимно перпендикулярных направлениях и наклонять его относительно пучка в пределах $\pm 5^\circ$ с точностью $\pm 5''$. Детекторная консоль может поворачиваться в вертикальной плоскости, изменяя угол обзора детектора в пределах от 12° сверху и 9° снизу относительно оси симметрии. В настоящее время установка укомплектована гелиевыми счетчиками для измерений в рефлектометрической моде.

Для установки разработаны двухкоординатные детекторы нейтронов: сцинтилляционный на основе ${}^6\text{LiF/ZnS(Ag)}$ и пропорциональная камера с

конвертером из твердого ^{10}B . Изготовлен и испытан прототип сцинтилляционного детектора. Изготовлена и испытана пропорциональная камера с одним конвертирующим слоем с возможностью увеличения количества конвертирующих слоев для увеличения эффективности регистрации нейтронов.

В рефлектометрической моде (рис. 1а и б) пучок нейтронов падает на плоскость образца, который может быть наклонен в плоскости рассеяния, обеспечивая необходимый угол падения нейтронов. При исследовании жидкостей, когда образец невозможно наклонять в плоскости рассеяния, необходимый угол падения нейтронов задается с помощью отклоняющего суперзеркала (рис. 1а). В малоугловой моде (рис. 1в) пучок нейтронов проходит сквозь образец и задерживается в ловушке прямого пучка, расположенной перед детектором. Рассеянные нейтроны регистрируются детектором, который располагается симметрично относительно падающего на образец пучка.

В третьей главе представлены результаты моделирования установки методом Монте-Карло и экспериментальные спектры, полученные в ходе испытаний установки. Были получены модельные спектры нейтронов на выходе нейтроновода и в позиции образца. Также получены оценки расходимости пучка при различной конфигурации коллимирующих щелей. Проведен анализ рабочего диапазона и разрешающей способности установки в различных конфигурациях и интенсивностей, соответствующих этим конфигурациям. В качестве исходного спектра для модели был использован экспериментальный времяпролетный спектр нейтронов, измеренный на II канале источника (без каких-либо оптических элементов: коллиматоров, нейтроноводов) во время физического пуска в 2004 г.

Разрешение установки по переданному импульсу определяется соотношением:

$$\frac{\Delta Q}{Q}(\theta, \lambda) = \sqrt{(\Delta\lambda/\lambda)^2 + (\Delta\theta_0^2 + \Delta\theta_s^2)/\theta^2} \quad (1)$$

$$\text{где } \Delta\lambda/\lambda = \sqrt{\tau_p^2 + \tau_{mod}^2 + \Delta t_d^2}/T_f$$

т. е. равна относительной погрешности определения времени пролета T_f , которая определяется длительностью протонного импульса τ_p , временем замедления нейтрона в замедлителе источника τ_{mod} и временным разрешением детектора нейтронов Δt_d . $\Delta\theta_0$ — расходимость падающего на образец пучка — $\Delta\theta_s$ для рефлектометрии — расходимость отраженного пучка, вызванная шероховатостями образца, а для малоуглового рассеяния

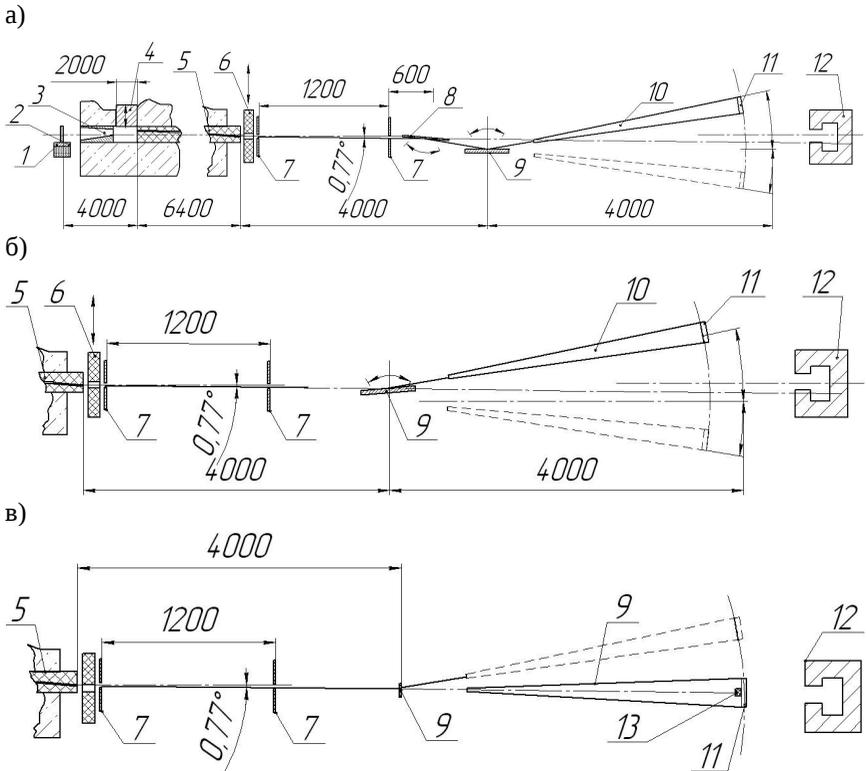


Рис. 1. Оптическая схема установки «Горизонт». а — режим нейтронного рефлектометра с отклоняющим суперзеркалом (для жидкостей), б — режим нейтронного рефлектометра без отклоняющего суперзеркала, в — режим малоуглового спектрометра. 1— протонная мишень, 2 — замедлитель, 3 — коллиматор, 4 — шибер, 5 — зеркальный нейтроновод, 6 — легкий шибер, 7— коллимирующие механизированные щели, 8 — отклоняющее суперзеркало, 9 — образец, 10 — консоль, 11 — детектор, 12— ловушка прямого пучка, 13 — дополнительная ловушка прямого пучка (для МУРН).

$\Delta\theta_s = \sqrt{s^2 + d^2} / l$, где s и d размеры образца и координатное разрешение детектора, а l — расстояние от образца до детектора.

Оценка длительности тепловой части нейтронного импульса $(\tau_p^2 + \tau_{mod}^2)^{1/2}$ была получена из ширины дифракционного пика. Была выбрана дифрактограмма порошка синтетического алмаза (карбонадо), измерен-

ная на блоке дифракции обратного рассеяния установки МНС, на II канале источника ИН-06. Ширина пика на полувысоте составляет 130 мкс (при длительности протонного импульса 90 мкс). Отсюда была получена оценка $\Delta\lambda/\lambda \sim 1\%$ (эта величина практически не изменяется с ростом λ).

Расходимость пучка была определена из модельных угловых распределений нейтронов в позиции образца. Зависимости расходимости пучка в горизонтальной и вертикальной плоскостях и интенсивности от ширины щелей приведены на рис. 2. Уменьшение расходимости неизбежно ведет к потере интенсивности пучка.

С помощью программы VITESS был получен модельный спектр нейтронов на выходе нейтроновода (см. рис. 3). Из данного спектра следует, что нейтроновод задерживает нейтроны с длиной волны менее 1 Å и усиливает плотность потока нейтронов с $\lambda > 1,8$ Å. Максимум данного спектра соответствует $\lambda = 1,8$ Å. На рис. 4. приведена зависимость усиления плотности нейтронного потока нейтроноводом от длины волны, полученная из модельного спектра.

Также методом Монте-Карло были получены возможные экспериментальные рефлектометрические кривые при различных частотах повторения импульсов. В качестве образца была выбрана поверхность тяжелой воды. Полученные времяпролетные спектры приведены на рис. 4. Из данных спектров следует, что при частоте 50 Гц неизбежны наложения на импульс холодных нейтронов от предыдущего импульса. Избежать наложений можно следующими способами: а) выбрать частоту протонных импульсов 25 Гц, б) использовать отклоняющее зеркало, перекрывающее пучок — нежелательные длинноволновые нейтроны отразятся, пропуская все остальные, в) установить в мишенном боксе прерыватель пучка, формирующий импульсы с частотой 25 Гц. Последний способ позволит другим установкам работать при частоте 50 и 100 Гц, таким образом повышая эффективность использования ускорительного времени.

Рабочий диапазон длин волн нейтрона определяется частотой повторения нейтронных импульсов и пропускной способностью нейтроновода. Максимально достижимая длина волны определяется соотношением:

$$\lambda_{max} = \frac{h}{m_n \cdot L \cdot f} \quad (2),$$

где h — постоянная Планка, m_n — масса нейтрона, $L = 18,5$ м — длина пролетной базы (расстояние от поверхности замедлителя до детектора), f — частота повторения нейтронных импульсов, и составляет 4 Å при частоте 50 Гц, и 8 Å при частоте 25 Гц. Благодаря изогнутому нейтроноводу возможно проводить измерения при λ до 9 Å, т.к. в промежуток времени между рождением нейтронов в мишени и приходом на образец нейтронов с

$\lambda > 1 \text{ \AA}$ возможно проводить измерения на длинноволновых нейтронах от предыдущего импульса. Как видно из рис. 4, часть спектра нейтронов от следующего импульса, которые могут быть отражены образцом, начинается только через 10 мс после импульса.

В 2010 г. был произведен пуск источника и проведены испытания установки. Получены экспериментальные спектры нейтронов на выходе нейтронновода и в позиции образца. На рис. 5 приведены спектры нейтронов, измеренные на выходе нейтронновода и на канале установки МНС, имеющей прямой нейтронновод, а также модельный спектр. Расхождение с модельным спектром, по-видимому, связано с отклонением реальной формы нейтронновода от проектной, а также зависимостью эффективности детектора от длины волны нейтрона. Из сравнения данных спектров видно, что нейтронновод ослабляет поток нейтронов с длиной волны менее 1 \AA , в том числе быстрые нейтроны, улучшая таким образом фоновую обстановку в экспериментальной зоне. Из профиля пучка нейтронов, измеренного на расстоянии 639 мм от выходного окна нейтронновода, получена расходимость пучка на выходе из нейтронновода. Оценочная величина расходимости — $0,45^\circ$, а расчетная, полученная методом Монте-Карло с помощью программы VITESS, составляет $0,50^\circ$. Также, был измерен профиль пучка на расстоянии 5 м от второй коллимирующей щели при высоте щелей 10 мм и расстоянии между ними 1671 мм. Найденная из полученного профиля расходимость в данной конфигурации составляет $0,2^\circ$. Данное значение соответствует расчетному, полученному методом Монте-Карло.

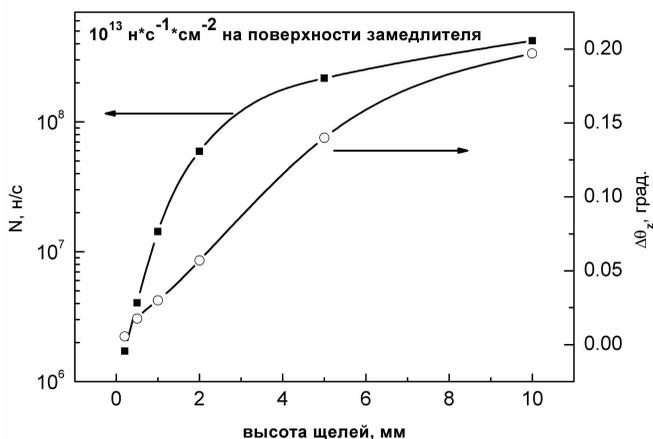


Рис. 2а. Расходимость пучка в вертикальной плоскости и интенсивность как функция высоты щелей

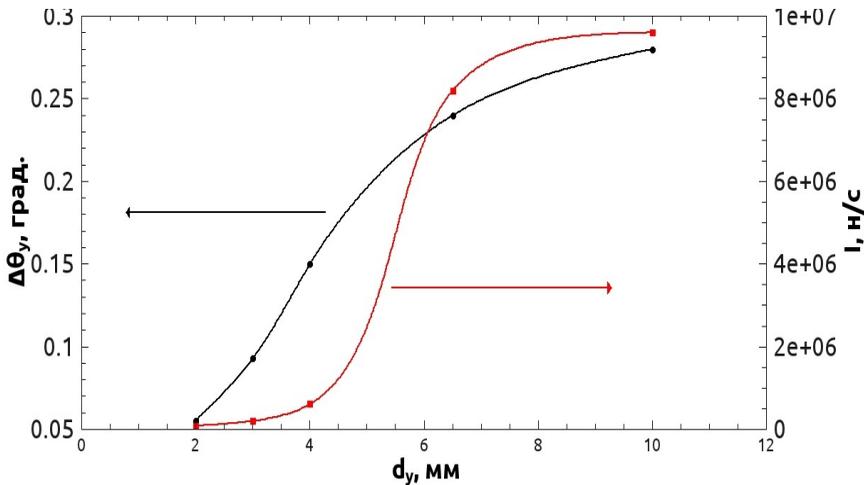


Рис. 26. Расходимость пучка в горизонтальной плоскости и интенсивность как функция ширины щелей.

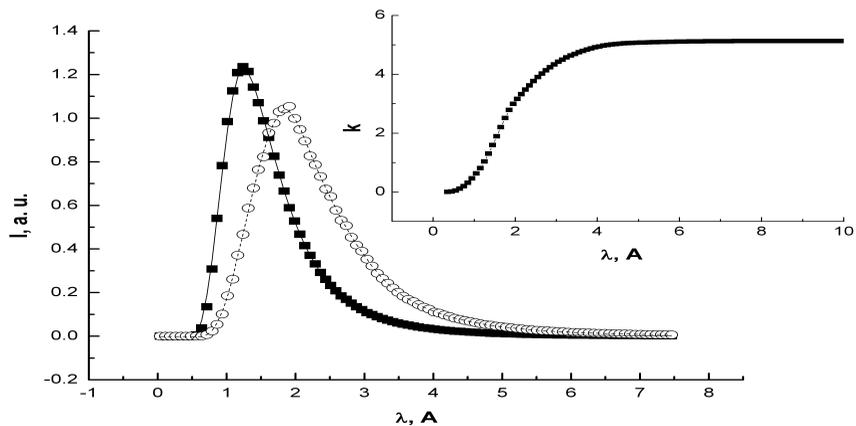


Рис. 3. Расчетный спектр нейтронов на выходе из нейтронвода (○) и спектр нейтронов на том же расстоянии от источника без нейтронвода (■). На вставке — усиление плотности потока нейтронов по сравнению с зеркалальным каналом в зависимости от длины волны.

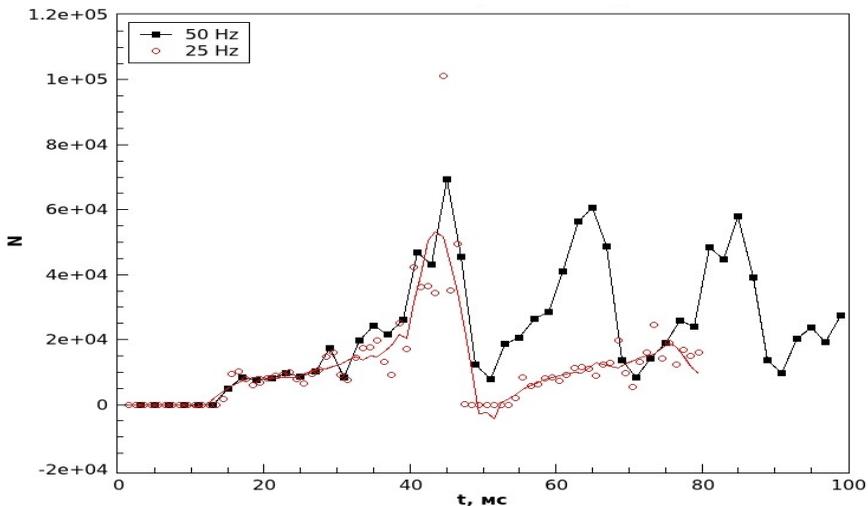


Рис. 4. Времяпролетный спектр отраженных от поверхности тяжелой воды нейтронов, полученный с помощью Монте-Карло-моделирования. Приводятся частоты 25 Гц (o) и 50 Гц (■).

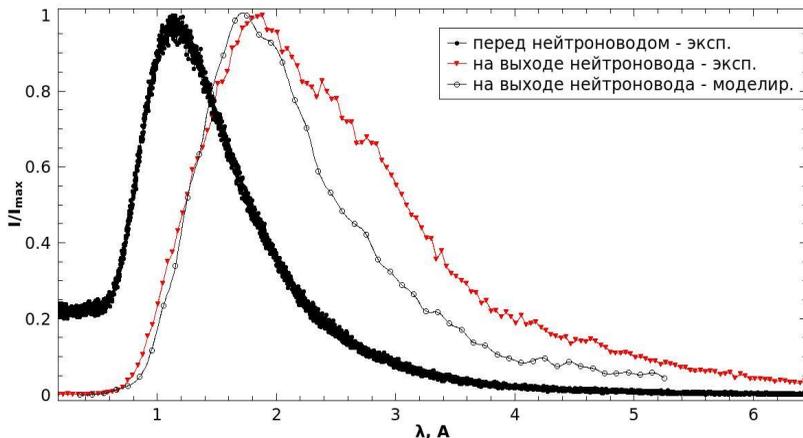


Рис. 5. Экспериментальные спектры, измеренные на выходе из нейтроноводов на установке «Горизонт» — треугольники и МНС — точки, а также модельный спектр на выходе из нейтроновода (-o-).

Четвертая глава посвящена разработке 2-координатных позиционно-чувствительных детекторов (ПЧД) нейтронов для установки «Гори-

зонт». Было принято решение отказаться от пропорциональных камер с заполнением гелием-3, которые обычно применяются в подобных установках, в пользу детекторов с твердым конвертером нейтронов, т. к. гелий-3 в настоящее время труднодоступен. Были разработаны 2-координатные детекторы с конвертирующим слоем из твердого бора-10 и сцинтилляционный с использованием лавинных фотодиодов (ЛФД) в качестве фотодетекторов.

Конструкция чувствительного элемента пропорциональной камеры схематически представлена на рис. 6. На внутренней стороне стеклянной пластины толщиной 1.9 мм нанесен конвертирующий слой из бора-10 толщиной 5 мкм, покрытый 20 нм промежуточным слоем полиимида и 500 нм-слоем алюминия, к которому приложено высокое отрицательное напряжение до -900 В. Другой высоковольтный катод состоит из изолированных дорожек-стрипов шириной 1.8 мм, нанесенных на стеклотекстолит с шагом 2 мм. Между катодами на расстоянии 1 мм от каждого из них расположена система анодных проволочек толщиной 20 мкм, намотанных перпендикулярно направлению стрипов с шагом 2 мм. Проволочки и соответственно стрипы соединены между собой через распределенное сопротивление 1.3 кОм, образованное из 64 чип-резисторов. Ионизационный заряд, образованный под действием вылетающих α -частиц, дрейфует к проволочкам, вблизи которых происходит образование лавины электронным ударом. Координаты определяются по методу деления заряда, собираемого с двух концов распределенного сопротивления.

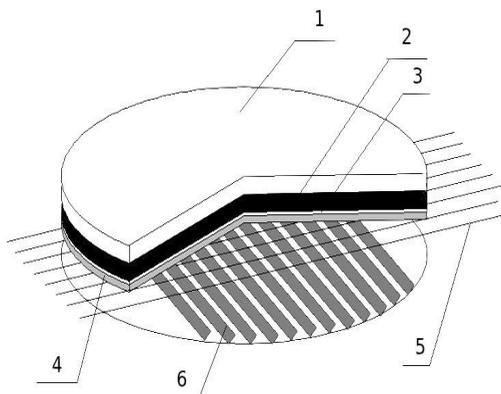


Рис. 6. Структура чувствительных элементов детектора: 1 — подложка из стекла, 2 — слой бора-10, 3 — промежуточный слой полиимида, 4 — катод из алюминия, 5 — анодные проволочки, 6 — катодные стрипы.

Через детектор непрерывно циркулирует газовая смесь из 73% Ar, 25% CO₂ и 2% SF₆, которая прокачивается через систему фильтров. Испытания детектора были проведены на источнике тепловых нейтронов, состоящем из постоянного ²³⁹Pu–Be источника быстрых нейтронов и окружающего его полиэтиленового замедлителя с толщиной стенок 5 см, обеспечивающего оптимальную термализацию. Осциллограммы сигналов на выходе предусилителя, вызванных зарегистрированным нейтроном, представлены на рис. 7. Фронты сигналов не превышают 100 нс. На рис. 8 показана счетная характеристика детектора, полученная при различных напряжениях питания. Можно заметить, что ширина плато счетной характеристики всего лишь 50 В для данной газовой смеси. Падение счетной характеристики при напряжениях выше 800 В предположительно связано с переходом детектора в ограниченный стримерный рабочий режим и с уменьшением локального электрического поля вблизи проволочек. Из литературных данных следует, что использование рабочей смеси из 80% CF₄ и изобутана позволяет расширить плато и увеличить коэффициент газового усиления. Оценка эффективности детектора с одним слоем бора-10, полученная из сравнения с гелиевым счетчиком, составляет 3%. Для повышения эффективности регистрации нейтронов конструкция детектора допускает установку дополнительных чувствительных элементов. Для данного детектора был разработан и изготовлен зарядо-цифровой преобразователь (ЗЦП) с временем интегрирования 0,1-1 мкс. Блок ЗЦП содержит также время-цифровой преобразователь (ВЦП), поэтому может быть использован для нейтронографических измерений по времяпролетной методике.

Также был разработан двухкоординатный ПЧД на основе сцинтилляторов с использованием лавинных фотодиодов (ЛФД) в качестве фотодетекторов. Схема детектора приведена на рис. 9. Был изготовлен прототип ПЧД с размером рабочей области 8x8 мм. Сбор светового потока осуществляется двумя плоскостями с восемью светособирающими волокнами в каждой. Для данного детектора были выбраны волокна Y11 диаметром 1 мм производства фирмы Kugaгау, Япония. Захват света волокнами максимален для длины волны 430 нм. Благодаря светосмещающим добавкам происходит увеличение длины волны. Максимум спектра высвечиваемых фотонов зависит от длины волокна приходится на 510 нм при длине волокна 150 см. Волокно захватывает и высвечивает около 5% падающего света в каждую сторону. Один из торцов каждого волокна вклеивался клеем VICRON600 в пластмассовую муфту, которая присоединялась к ЛФД, причем в стыке применялся оптический гель NyoGel, а к другому торцу приклеивалась светоотражающая пленка (майлар), для увеличения светового потока, собираемого ЛФД.

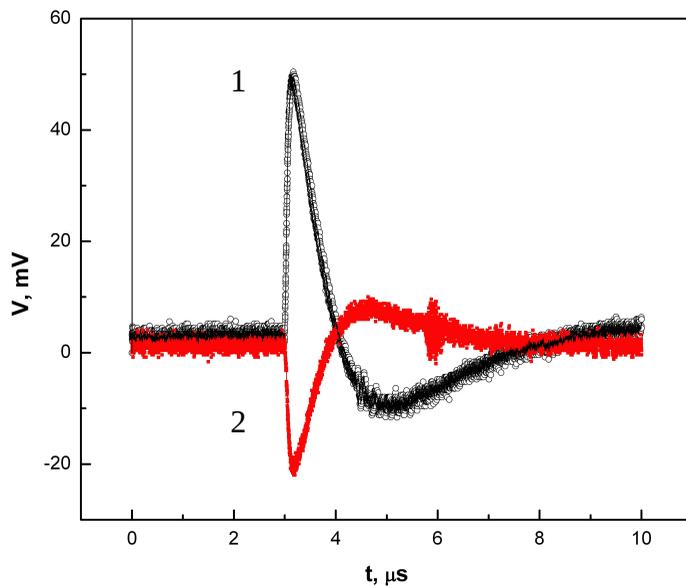


Рис. 7. Формы импульсов от зарегистрированного детектором нейтрона, с анодных проволочек (1), с катодных стрипов (2) (сигнал инвертирован).

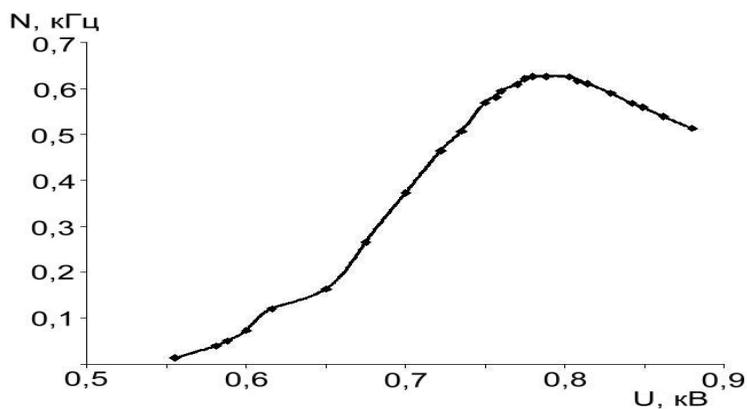
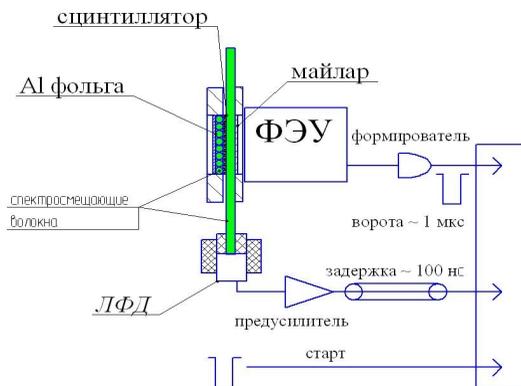


Рис. 8. Счетная характеристика детектора при облучении источником $^{239}\text{Pu-Be}$.



ЗЦП + ВЦП

Рис. 9. Схема прототипа сцинтилляционного детектора.

Волокна в плоскостях взаимоперпендикулярны. Для размещения волокон служат две алюминиевые пластины, в каждой из которых имеется канавка для укладки восьми волокон и окно размером $8 \times 8 \text{ мм}^2$. Для увеличения светового потока, собираемого волокнами, плоскости волокон покрывались алюминиевой фольгой со стороны падения нейтронного пучка и майларом, с противоположной стороны. Сцинтиллятор размером $8 \times 8 \text{ мм}^2$ помещается между плоскостями из светосмещающих волокон, пространство между волокнами и сцинтиллятором заполнено оптическим гелем. Сигнал с ЛФД после предусилителя регистрируется с помощью зарядо-цифрового преобразователя (ЗЦП). Чтобы отделить импульсы, вызванные захватом нейтрона сцинтиллятором, от темновых импульсов, регистрация событий происходит по воротам, которые вырабатываются фотоэлектронным умножителем ФЭУ-95, размещенным напротив массива волокон. ФЭУ регистрирует фотоны, не захваченные волокнами и прошедшие через майлар, далее сигнал подается в дискриминатор, который формирует ворота. Длительность ворот была выбрана равной 1 мкс, т.к. за это время высвечивается около 90% всех фотонов, образующихся в сцинтилляторе ZnS(Ag) в процессе захвата нейтрона ядром ${}^6\text{Li}$. Для регистрации фотонов на торцах волокон служат ЛФД производства фирмы «ЦПТА» (г. Москва) с рабочей площадью $1 \times 1 \text{ мм}^2$. Эффективность регистрации фотонов при длине волны 475 нм, соответствующей максимуму эмиссии фотонов светосмещающим волокном, составляет 20%.

Для испытаний прототипа детектора использовался источник нейтронов ${}^{252}\text{Cf}$ с замедлителем из полиэтилена толщиной 5 см. Полученный спектр приведен на рис. 10. Также на рис. 10 приведен амплитудный

спектр, полученный от потока нейтронов, перекрытого листом кадмия толщиной 1 мм, и спектр темновых импульсов. Счет детектором при перекрытом кадмием потоке нейтронов составлял 0,2 счета при непокрытом потоке. Также был измерен спектр темновых импульсов детектора, вызванный темновыми импульсами ЛФД, случайно попадающими в ворота. Для этого в качестве ворот использовались прямоугольные импульсы, длительностью 1 мкс, вырабатываемые генератором. Как видно из вставки на рис. 10, счет от темновых импульсов, попадающих в ворота, пренебрежимо мал. Во всех спектрах присутствует резко растущий участок при $Q < 30$ канала — это пьедестал, т.е. шум, регистрируемый ЗЦП. Таким образом, показано, что предложенная схема детектора с использованием ЛФД может применяться для создания двухкоординатных детекторов нейтронов.

В пятой главе приводятся результаты исследования структуры сплава 40ХНЮ (58% Ni, Cr-39% Al-3%) в зависимости от термообработки. Данный сплав является немагнитным (восприимчивость $< 0,003$ СГСМ/г), а по твердости не уступает стали (до 60 по Роквеллу), поэтому является перспективным материалом для изготовления деталей установок, предназначенных для эксплуатации в магнитных полях. Данный сплав после закалки при температурах около 1150-1250°C становится мягким, а в процессе отжига — твердым.

Максимальная твердость достигается в результате отжига при 650 °С. Ранее сплав исследовался методами рентгеновской дифракции, электронной микроскопии и электронной микродифракции. Из литературы известно, что после закалки сплав имеет микродуплексную структуру, частицы α -фазы — твердого раствора на основе хрома, размером в несколько мкм, которые находятся в матрице γ -фазы — твердого раствора на основе никеля. В процессе отжига происходит измельчение частиц α -фазы до средних размеров 200 нм и образование частиц γ' -фазы (Ni_3Al) со средним размером до 100 нм.

Камеры высокого давления системы поршень-цилиндр, изготовленные из данного сплава, ранее успешно применялись для измерений в магнитных полях. Была поставлена задача определить возможность использования данных камер высокого давления для экспериментов по МУРН.

Методом нейтронной дифракции структура сплава в зависимости от термообработки была исследована на импульсном источнике нейтронов «РАДЭКС» ИЯИ РАН. Было обнаружено, что отжиг приводит к сдвигу всех дифракционных пиков, наблюдаемых в закаленном состоянии, на 0,2 Å в сторону уменьшения межплоскостных расстояний.

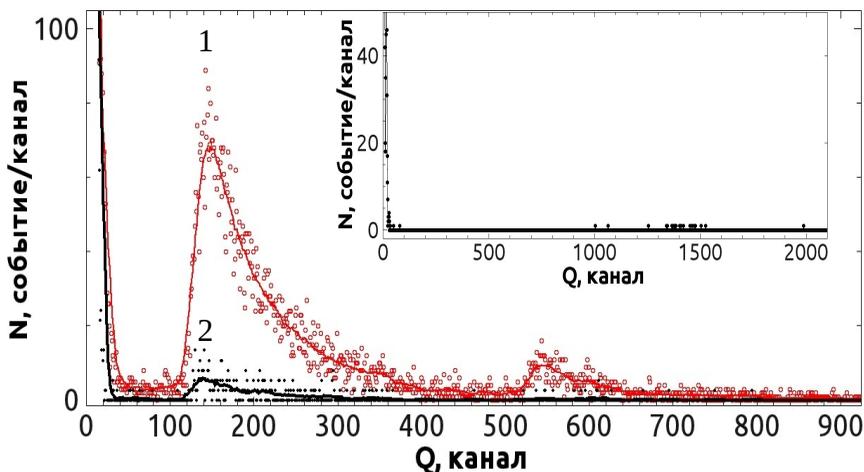


Рис. 10. Зарядовые спектры, полученные от детектора нейтронов. 1 — без кадмия, 2 — с кадмием. На вставке — зарядовый спектр темновых импульсов детектора (за эквивалентное время).

Методом МУРН структура сплава в зависимости от термообработки была исследована на малоугловом нейтронном дифрактометре KWS-2 на реакторе FRM-II, Германия. Для исследования был выбран сплав 40ХНЮ промышленного изготовления (г. Электросталь). Образцы были изготовлены в виде шайб диаметром 10 мм и толщиной 2, 3 и 5 мм. Полученные шайбы были закалены путем нагрева до 1200 °С и охлаждения в воде, после чего подвергались отжигу в течение 1 часа при температурах 200-700 °С.

Спектры МУРН для образцов с различной твердостью (подвергавшихся отжигу из закаленного состояния при различных температурах, а также не подвергавшихся отжигу) приведены на рис. 11. Отжиг из закаленного состояния приводит к сильному увеличению сечения рассеяния нейтронов в области малых переданных импульсов ($Q < 0,3 \text{ \AA}^{-1}$).

Участки спектров МУРН для образцов, подвергавшихся отжигу, могут быть аппроксимированы функцией, предложенной в [1]:

$$I(Q) = I_0 \exp\left(-\frac{R_g Q^2}{3}\right) + B \left(\operatorname{erf}\left(\frac{R_g Q}{\sqrt{6}}\right) \right)^3 / Q^p + Bg \quad (3)$$

где $\operatorname{erf}(x)$ — функция ошибок, Bg — фон.

Данная функция может описать кривую МУРН во всем представленном диапазоне переданных импульсов, при малых Q она приближается к функции Гинье (первое слагаемое в (3)), а при больших — к степенной зависимости вида Q^p . Показатель степени $p > 4$ свидетельствует о наличии гладкой поверхности частиц, т.е. частицы имеют форму шара или эллипсоида. Из аппроксимации экспериментальной кривой функцией (3) были получены значения характерных размеров частиц $d \approx 2R_{шара} = 2(5R_g/3)$ в предположении, что частицы имеют форму шара. Для образцов с максимальной твердостью характерный размер частиц составляет ~ 100 нм.

Спектры МУРН не подвергавшихся отжигу закаленных образцов имеют три характерных участка (см. рис. 11). Первый участок $Q=0,007-0,07 \text{ \AA}^{-1}$ подчиняется закону Q^{-4} , из чего можно сделать вывод о наличии наночастиц с характерными размерами более 500 нм. На втором участке $Q=0,07-0,4 \text{ \AA}^{-1}$ после вычитания функции, описывающей первый участок, наблюдается отклонение от степенного закона. Это отклонение можно объяснить наличием частиц с характерным размером 10 нм, так что сечение рассеяния этими частицами переходит в режим Гинье. Третий участок кривой имеет горизонтальную асимптоту Bg , которая растет с увеличением твердости сплава. Данная серия кривых может быть описана функцией

$$I(Q) = A_0 Q^{-p_0} + I_0 \exp\left(-\left(R_g Q\right)^2/3\right) + B \left(\left(\operatorname{erf}\left(R_g Q/\sqrt{6}\right) \right)^3 / Q \right)^p + Bg \quad (4)$$

с показателем степени $p_0=4,0-4,3$. Таким образом, можно сделать вывод о наличии частиц трех видов: с характерными размерами более 500 нм (начальная часть кривой, описываемая степенной функцией), с характерными размерами около 10 нм (средняя часть, описываемая функцией (3)) и менее 1 нм (горизонтальная асимптота).

Спектры МУРН, измеренные в процессе отжига, имеют тот же характер, что и спектры МУРН для образцов при комнатной температуре с соответствующей твердостью. Однако на спектрах, соответствующих закаленному (мягкому) состоянию, пик наблюдается при $0,015 \text{ \AA}^{-1}$. Кроме того при $Q > 0,1 \text{ \AA}^{-1}$ кривая начинает резко спадать. Этот участок можно описать законом Гинье. Характерный размер частиц для этого участка — менее 1 нм. В процессе отжига из закаленного состояния при температурах ниже 450°C спектры МУРН не претерпевают изменений (см. рис. 12). При температуре отжига 450°C наблюдается значительное изменение структуры: пик в средней части кривой растет и смещается в сторону меньших переданных импульсов. Вместе с тем растет сечение рассеяния в области малых переданных импульсов и исчезает степенная зависимость в начальной

части кривой. При температурах отжига выше 450 °С происходит увеличение сечения рассеяния во всем диапазоне переданного импульса. Следовательно, отжиг из закаленного состояния при температурах выше 450 °С приводит к увеличению размеров наночастиц до 20 нм, а отжиг при температурах 450-650 °С приводит к увеличению концентрации данных наночастиц.

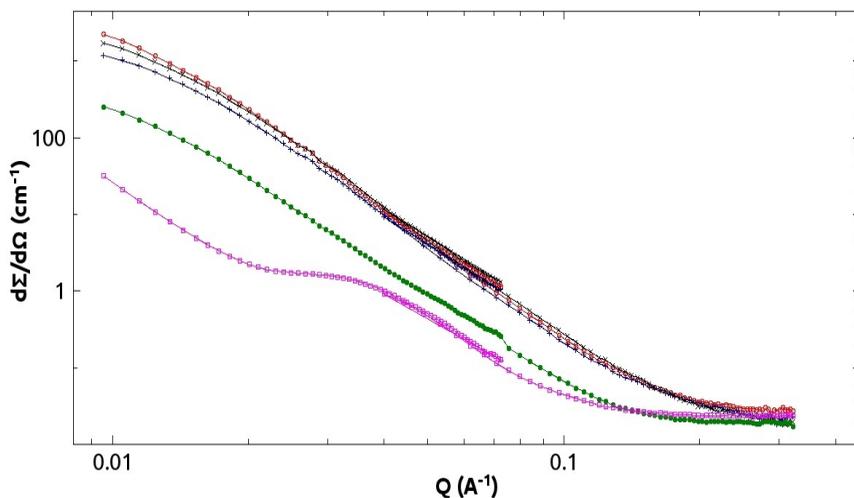


Рис. 11. Спектры МУРН для сплава 40ХНЮ с различной твердостью, измеренные при комнатной температуре. Твердость по Роквеллу: <math>< 10</math> (□), 27 (●), 48 (+), 58 (x) и 54 (○).

Методом МУРН была также исследована кинетика изменений структуры сплава в нанометровом масштабе при температуре отжига 450 °С. Измерения спектров МУРН производились через каждые 45 минут в процессе отжига в течение 10-ти часов. Из графиков следует, что изменение структуры в нанометровом масштабе при 450 °С происходит в течение 8 часов. Поэтому для достижения максимальной твердости отжиг при данной температуре следует проводить не менее 8 часов.

Опираясь на данные микроскопии и электронной микродифракции из литературы, можно сделать вывод, о том, что в закаленном сплаве присутствуют кристаллиты фаз α и γ с характерным размером более 500 нм. Вместе с тем, в данных работах не говорится о наличии наночастиц с характерными размерами около 10 нм и менее 1 нм. Можно предположить, что это

частицы фазы γ' , и в процессе отжига увеличивается их размер и концентрация.

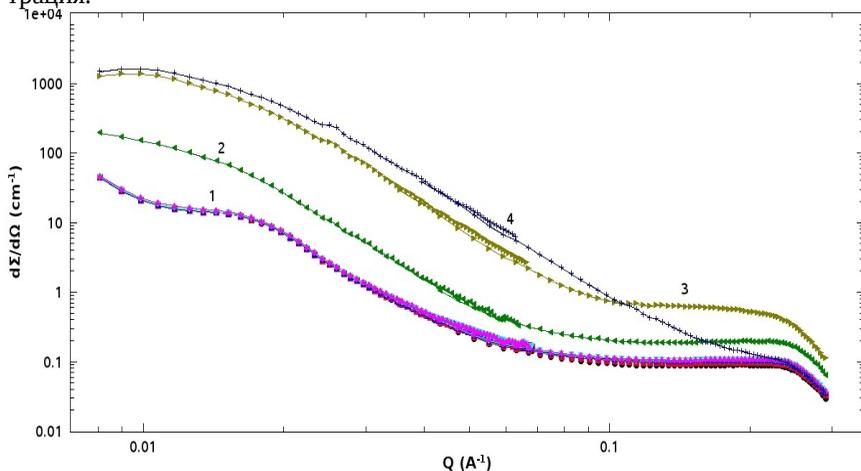


Рис. 12. Спектры МУРН, измеренные в процессе отжига из закаленного состояния, при температурах до 450 °С (1), при 450 °С после 8-часового отжига (2), 500 °С (3) и 650 °С (4).

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ РАБОТЫ

Основные результаты, полученные в диссертации следующие:

1. На импульсном источнике нейтронов ИН-06 создан нейтронный рефлектометр-малоугловой спектрометр «Горизонт». Данная установка позволяет проводить нейтронную рефлектометрию в вертикальной плоскости по времяпролетному методу. Преимуществом данной установки является возможность исследования жидких образцов в широком диапазоне переданных импульсов, не затрачивая время на изменение геометрии установки, что особенно важно для непрерывных измерений (in situ).
2. Проведено моделирование оптической схемы установки «Горизонт» методом Монте-Карло с помощью программы VITESS. Рабочий диапазон установки по длинам волн нейтронов лежит в интервале 1,5 - 9 Å, а по переданным импульсам — 0,003 - 0,75 Å⁻¹. Проведены испытания установки на источнике ИН-06, получены спектры нейтронов и профиль

пучка. Полученные результаты подтверждают верность модельных расчетов.

3. С помощью Монте-Карло моделирования показано, что для работы установки оптимальна частота нейтронных импульсов не более 25 Гц, в противном случае возможно перемешивание вкладов длинноволновых и коротковолновых нейтронов от различных импульсов.
4. Для установки «Горизонт» разработаны двухкоординатные позиционно-чувствительные детекторы тепловых и холодных нейтронов, предназначенные для измерений по методу времени пролета. Разработан и изготовлен 2-координатный позиционно-чувствительный детектор нейтронов на основе конвертера из бора-10 и пропорциональной камеры. Так как давление газовой смеси близко к атмосферному, возможно применять тонкое алюминиевое входное окно (1 мм или тоньше), что позволяет уменьшить ослабление потока холодных нейтронов. Благодаря тонкому (5-мкм) чувствительному слою конвертера достигается высокое временное разрешение (~50 нс), которое определяется главным образом временем нарастания сигналов.
5. Разработан двухкоординатный детектор нейтронов на основе сцинтиллятора LiF/ZnS(Ag) с использованием спектросмещающих волокон и лавинных фотодиодов. Испытан прототип детектора. Предложенная схема, использующая лавинные фотодиоды, является простой и недорогой альтернативой аналогичным детекторам на основе ФЭУ. Разработанные детекторы имеют стабильную эффективность, тогда как в детекторах на основе ^3He эффективность регистрации нейтронов со временем может падать вследствие утечки газа.
6. Была исследована структура сплава 40ХНЮ методами нейтронной дифракции и МУРН в зависимости от термообработки. Данный сплав считается перспективным материалом для элементов установок, предназначенных для работы в магнитных полях. Были получены нейтронные дифрактограммы и спектры МУРН образцов сплава 40ХНЮ с различной твердостью. Также методом МУРН были исследованы изменения структуры сплава в процессе отжига из закаленного состояния. Обнаружено, что изменения структуры сплава происходят при температуре отжига не ниже 450 °С. Изменение структуры при 450 °С происходит в течение 8-ми часов. Было установлено, что в результате отжига из закаленного состояния образуются наночастицы с характерным размером ~100 нм. Образование данных наночастиц ведет к повышению твердости сплава. Сплав с максимальной твердостью обладает максимальным сечением малоуглового рассеяния нейтронов, поэтому применение изделий из данного сплава в исследованиях методом малоуглового рассея-

ния нейтронов не рационально (за исключением малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов, особенно с переворотом спина).

Основные публикации по теме диссертации

1. В. С. Литвин, А. Д. Беляев, С. М. Игнатов, В. Г. Недорезов, Р. А. Садыков, А. А. Алексеев, Е. В. Кузнецова, В. Л. Кузнецов, В. Н. Марин. Применение сцинтилляторов на основе $ZnS(Ag)^6LiF$ и $LiI(Eu)$ в сочетании с кремниевыми фотоумножителями в детекторах тепловых нейтронов с высоким координатным и временным разрешением. Известия РАН. Серия физическая. 2009, Т. 73, №2, С. 230-232.
2. В. С. Литвин, С. И. Поташев, В. И. Разин, Р. А. Садыков. Позиционно-чувствительный проволочно-стриповый детектор тепловых и холодных нейтронов с борным конвертером. Известия РАН. Серия физическая. 2011, Т. 75, №2, стр. 252-255.
3. В. С. Литвин, А. П. Булкин, С. И. Калинин, Р. А. Садыков, В. А. Ульянов, В. А. Соловей, М. Р. Колхидашвили, В. А. Трунов, Э. А. Коптелов. Нейтронный рефлектометр-малоугловой спектрометр «Горизонт» на импульсном источнике нейтронов ИН-06. Поверхность. Рентгеновские, синхронные и нейтронные исследования. 2010, №11, стр. 3-11.
4. Ю.В. Рябов, М.И. Грачев, Д.В. Каманин, Е.В. Кузнецова, В.Л. Кузнецов, Э.А. Коптелов, О.Н. Либанова, В.С. Литвин, В.И. Разин, Р.А. Садыков, Н.М. Соболевский, В.А. Федченко, Импульсный нейтронный источник на протонном пучке Московской мезонной фабрики. Физика твердого тела. 2010. Т. 52. №5 С. 957-961.
5. Исследование кинетики отжига сплава 40 ХНЮ методом малоуглового рассеяния нейтронов. Р. А. Садыков, В. С. Литвин, А. И. Харьковский, М-S. Arravou, А.Ioffe. Сборник трудов IV МЕЖДУНАРОДНОЙ КОНФЕРЕНЦИИ <<ДЕФОРМАЦИЯ И РАЗРУШЕНИЕ МАТЕРИАЛОВ И НАНОМАТЕРИАЛОВ>> с. 850-851
6. Исследование структуры сплава 40ХНЮ методом нейтронной дифракции и малоуглового рассеяния нейтронов. Р. А. Садыков, В. С. Литвин, А. В. Гулютин, В. П. Глазков, А.А. Алексеев, М-S. Arravou, А. Ioffe. Сборник трудов IV МЕЖДУНАРОДНОЙ КОНФЕРЕНЦИИ <<ДЕФОРМАЦИЯ И РАЗРУШЕНИЕ МАТЕРИАЛОВ И НАНОМАТЕРИАЛОВ>> с. 849-850.
7. Первые испытания нейтронного рефлектометра-малоуглового дифрактометра <<ГОРИЗОНТ>> для исследования наноструктур и на-

номатериалов. В.С. Литвин. Сборник трудов VIII Российской ежегодной конференции молодых научных сотрудников и аспирантов "Физико-химия и технология неорганических материалов" с. 182-183.

8. A complex of complementary pulsed neutron sources, neutron and radiographic nano-diagnostic instruments at the Institute for Nuclear Research RAS. E.A. Koptelov, Yu.V.Ryabov, A.A. Alekseev; S.F. Sidorkin, M.I. Grachev, V.A. Fedchenko, R.A. Sadykov, V.S.Litvin, S.P.Kuznetsov, E.S. Cmentyev, P.A. Alekseev, V.A. Trunov, A.P. Bulkin, V.A Ulianov, S.N. Axenov, Journal of Physics: Conference Series, V. 291, 2011, pp. 12012-12017.
9. A new time-of-flight neutron reflectometer and SANS instrument GORIZONT at IN-06 spallation neutron source. V. S. Litvin, V. A. Trounov, V. A. Ulyanov, A. P. Boulkine, S. I. Kalinin, A. A. Alekseev, R. A. Sadykov and E. A. Koptelov. J. Phys.: Conf. Ser. 2012 v. 340 p. 012032.
10. «Прототип 2-координатного детектора нейтронов на основе сцинтиллятора ZnS/LiF спектросмещающих световодов и лавинных фотодиодов». Литвин В.С., Краевский С.Х., Недорезов В.Г. Препринт ИЯИ РАН №1324/2012.
11. Экспериментальные спектры нейтронов нейтронографических установок импульсного источника нейтронов ИН-06 ИЯИ РАН, Препринт ИЯИ РАН №1305/2011, А.А. Алексеев, Р.А. Садыков, Е.С. Клементьев, В.С. Литвин, С.Н. Аксенов, Ю.В. Григорьев, Э.А. Коптелов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. G. Beaucage. Approximations Leading to a Unified Exponential/Power-Law Approach to Small-Angle Scattering. *J. Appl. Cryst.* (1995). 28, 717-728.