

## Современная структурная нейтронография на импульсных источниках нейтронов

А.М. Балагуров<sup>1</sup>, Д. Сангаа<sup>1,2\*</sup>

<sup>1</sup>Лаборатория нейтронной физики им.И.М.Франка, Объединенный институт ядерных исследований, г. Дубна, Россия

<sup>2</sup> Институт Физики и Технологии Академии наук Монголии, г. Улан-Батор, Монголия

\*Э-почта: [sangaa@nf.jinr.ru](mailto:sangaa@nf.jinr.ru)

Рассмотрена ситуация с нейтронными дифракционными исследованиями кристаллов на импульсных источниках нейтронов. После изложения общих вопросов структурной нейтронографии с использованием метода времени пролета, рассмотрены особенности экспериментов с высоким разрешением на поликристаллических веществах, структурный анализ и специальные эксперименты на монокристаллах, исследования необратимых переходных процессов малой длительности и микрообразцов при высоких давлениях, а также использование дифракции нейтронов для решения прикладных задач.

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Современная физика твердого тела это в основном физика кристаллов. Рассмотрение любых вопросов, связанных со свойствами кристаллов, начинается с рассмотрения их структуры. Соответственно, знание структуры кристаллов часто является определяющим моментом успешного решения многих фундаментальных и прикладных задач.

В структурном анализе кристаллов существуют задачи, решение которых рентгеновскими методами связано с большими трудностями, а иногда вообще невозможно на современном уровне техники эксперимента. В первую очередь к ним относятся определение положений легких атомов в окружении тяжелых, изучение структур, содержащих элементы с близкими атомными номерами, анализ магнитной структуры кристаллов, исследование теплового движения атомов и магнитных моментов в кристаллах. В этих случаях (и ряде других) наиболее эффективным экспериментальным методом оказывается рассеяние нейтронов низких энергий (их обычно называют “медленными”), взаимодействие которых с веществом имеет другую, нежели в случае рентгеновских лучей, природу. Нейтроны в веществе взаимодействуют как с ядрами, так и с электронами атомов. Амплитуда ядерного рассеяния определяется свойствами ядерных сил; она не спадает с увеличением переданного импульса и не зависит от атомного номера таким регулярным образом, как для рентгеновских лучей. Магнитное взаимодействие нейтрона с магнитными моментами атомов в настоящее время служит

основным источником информации о магнитных структурах.

Исключительно удачным обстоятельством является то, что для медленных нейтронов длина волны де Бройля по величине близка к межатомным расстояниям в кристаллах или жидкостях, а их энергия близка к кинетической энергии типичных атомных движений. Эти соответствия позволяют с помощью дифракции нейтронов определять атомную структуру вещества, а с помощью неупругого рассеяния нейтронов получать сведения о динамике атомов и магнитных моментов. Еще одним важным обстоятельством является то, что взаимодействие медленных нейтронов с веществом, как ядерное, так и магнитное, относительно слабо. Как следствие, в ходе экспериментов нейтроны не нарушают структуру и не изменяют химические свойства вещества. Кроме того, результаты нейтронных экспериментов поддаются сравнительно простой интерпретации, т.к. при вычислении сечения рассеяния достаточно ограничиться первым порядком теории возмущений. Слабое взаимодействие обуславливает и большую глубину проникновения нейтронов в образец, что позволяет исследовать объемные эффекты.

Отмеченные особенности взаимодействия нейтронов с веществом послужили основой для оформления нейтронографии (neutron scattering) как исключительно эффективного экспериментального метода исследования конденсированных сред. Традиционно в нейтронографии принято выделять (см., например, [1]) структурную нейтронографию (определение атомной или молекулярной структуры кристаллов), магнитную нейтронографию (определение магнитной структуры кристаллов) и нейтронную

спектроскопию (анализ атомной или магнитной динамики кристаллов). В настоящем обзоре рассмотрено современной состоянии структурной (и, в некоторой степени, магнитной) нейтронографии на импульсных источниках нейтронов. Примеры, которыми иллюстрируется изложение, взяты, в основном, из публикаций сотрудников Лаборатории нейтронной физики имени И.М.Франка, работающих на одном из лучших исследовательских нейтронных источников в мире – на импульсном реакторе ИБР-2 в ОИЯИ (Дубна).

## II. СОВРЕМЕННЫЕ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЕ ИСТОЧНИКИ НЕЙТРОНОВ И НЕЙТРОННЫЕ ДИФРАКТОМЕТРЫ

Современные исследовательские нейтронные источники можно разделить на два принципиально разных типа – стационарные и импульсные. К первым относятся многочисленные ядерные реакторы, ко вторым – пока еще немногочисленные источники на основе протонных ускорителей (Spallation Neutron Source, далее SNS). И те, и другие в нейтронных лабораториях мира уже давно используются как стандартные источники: реакторы с 1950-х годов, SNS – со середины 1980-х. Из нестандартных источников следует упомянуть SINQ в PSI (Швейцария), который является SNS источником, но непрерывного действия [2], и ИБР-2 в ОИЯИ (Россия), который является ядерным реактором, но импульсным [3].

Среди импульсных источников нейтронов в настоящее время выделяют источники с коротким (ориентировочно с  $\Delta t_0 < 50$  мкс) и с длинным импульсом (с  $\Delta t_0 > 300$  мкс). Необходимость такого разделения связана с тем, что ширина импульса источника оказывает решающее влияние на разрешающую способность дифрактометра и соответственно на возможность проведения тех или иных экспериментов. К первому типу (их называют SPS – short pulse source) относятся все ныне действующие SNS (два в США, по одному в Великобритании и в Японии). Пока единственным действующим источником с длинным импульсом (LPS – long pulse source) является реактор ИБР-2, но уже обоснованы планы создания SNS с длинным импульсом, в частности, нового общеевропейского источника ESS (European Spallation Source), который начал сооружаться в Швеции [4]. Расчеты показали, что экономически это намного более выгодный

вариант, чем SPS, а формирование нейтронных импульсов с необходимой для экспериментов шириной можно реализовать с помощью механического прерывателя.

Схема экспериментальных залов на импульсном реакторе ИБР-2 приведена на рис. 1, где показаны расположенные вокруг реактора нейтронные спектрометры для различных типов исследований. Общее число спектрометров на импульсных источниках может достигать до нескольких десятков (около 30 на ISIS), причем при работе источника эксперименты ведутся одновременно на всех нейтронных спектрометрах.

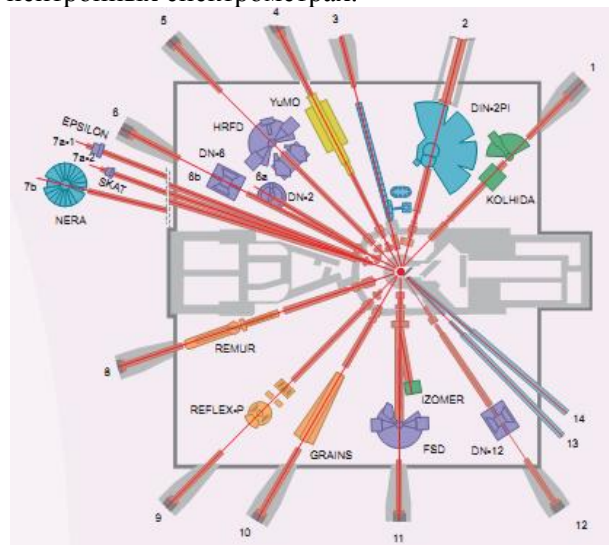


Рис. 1. Схема импульсного нейтронного источника ИБР-2, действующего в ЛНФ ОИЯИ (Россия). Реактор находится в центре, вылетающие из него нейтроны замедляются водяными или метановыми замедлителями до тепловых энергий и через каналы в защите попадают на спектрометры, расположенные вокруг мишени [3].

Тепловая мощность импульсных источников и, следовательно, выход нейтронов на них постоянно растут. Первые ускорительные импульсные источники нейтронов, созданные в начале 1980-х годов, работали при средней тепловой мощности всего несколько киловатт. На импульсном реакторе ИБР-2 ее удалось поднять до 2 МВт. Созданные в последние годы SNS в США и Японии действуют на мощности около 1 МВт, тогда как ESS планируется на среднюю мощность 5 МВт.

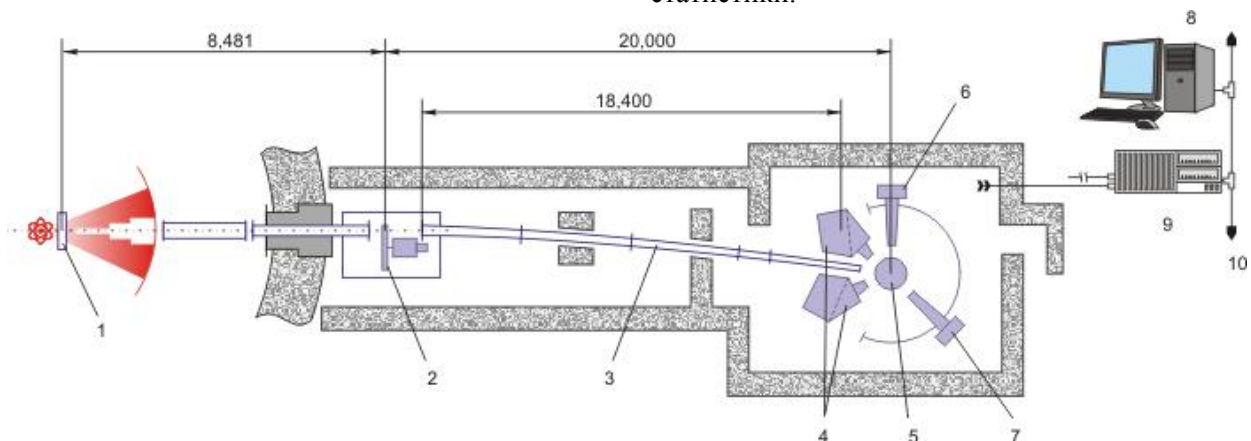
Известно, что нейтронные дифрактометры на стационарных реакторах фактически копируют схему рентгеновского дифрактометра: монохроматор посылает на образец узкую ( $\Delta\lambda/\lambda \approx 0.01$ ) линию с длиной волны  $\lambda_0$ , развертка дифракционного спектра ведется по углу рассеяния и осуществляется либо многосчетчиковыми, либо позиционно-чувствительными детекторами. Нейтронные

дифрактометры такого типа стали называть двусносными или “ $\lambda_0$ -дифрактометрами”.

Причинами, позволяющими организовать нейтронный дифракционный эксперимент существенно иначе, чем рентгеновский, является то, что энергетический спектр тепловых нейтронов из реактора имеет непрерывный (максвелловский) характер, скорость тепловых нейтронов невелика и есть возможность осуществить анализ энергии (или длины волны) нейтрона по времени пролета. В середине 50-х годов эти факторы были осознаны, что привело впоследствии к созданию нейтронных дифрактометров по времени пролета или “TOF-дифрактометров” (от термина Time-Of-Flight). Степень монохроматизации в этом случае зависит от ширины импульса источника и пролетного расстояния и может составлять  $\sim 3 \cdot 10^{-4}$ .

### III. СПЕЦИФИКА НЕЙТРОНОГРАФИИ ПО ВРЕМЕНИ ПРОЛЕТА

Функциональная схема TOF-дифрактометра стандартна для нейтронных спектрометров, действующих по методу времени пролета: нейтроны от импульсного источника после замедления до тепловых энергий пролетают первичную базу, на которой происходит их коллимация и монохроматизация, рассеиваются на образце и под некоторыми фиксированными направлениями регистрируются детекторами (рис. 2). Устройство анализа записывает в оперативную память дифракционный спектр с разверткой по времени пролета нейтронов от замедлителя (или от дополнительного прерывателя) до детектора. Спектры от последовательных импульсов источника суммируются для накопления необходимой статистики.



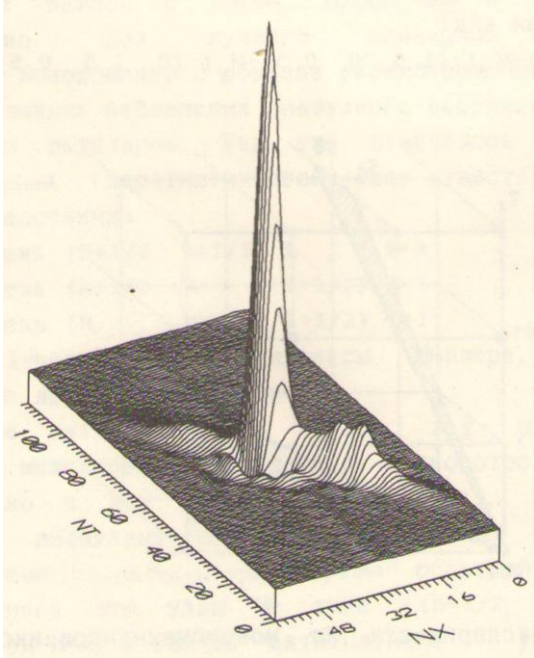
**Рис. 2.** Схема TOF-дифрактометра HRFD на импульсном реакторе ИБР-2 (ЛНФ ОИЯИ, Дубна). Указаны: замедлитель нейтронов рядом с активной зоной реактора (1), фурье-прерыватель, служащий для дополнительного сокращения ширины импульса (2), зеркальный нейтронотвод, формирующий пучок нейтронов на образце (3), детекторы обратного рассеяния (4), место расположения образца для исследований (5), дополнительные детекторы на средних и малых углах рассеяния (6, 7), электроника контроля эксперимента (8), накопления данных (9) и их передачи (10). Расстояния указаны в миллиметрах.

Наиболее важным следствием перехода к непрерывному спектру и применения метода времени пролета для развертки дифракционной картины является многократное увеличение коэффициента использования нейтронов от источника. В результате, несмотря на то, что средний по времени поток нейтронов на существующих импульсных источниках значительно меньше, чем на стационарных -  $\Phi = 1 \cdot 10^{13}$  для ИБР-2 (ОИЯИ) и  $\Phi = 1.5 \cdot 10^{15}$  н/см<sup>2</sup>/с для HFR (ILL, Гренобль) – скорость накопления дифракционных данных оказывается сравнимой, а для некоторых специальных типов экспериментов она может быть во много раз выше на TOF-дифрактометре.

Диапазон используемых на TOF-дифрактометре длин волн может быть очень широким. Обычно это 0.9-8 Å, хотя реально используются как очень малые, до 0.3 Å, так и очень большие, вплоть до 20 Å, длины волн. Это позволяет с помощью небольшого числа детекторов перекрыть широкий диапазон по межплоскостным расстояниям, как правило, от 0.5 до 30 Å.

На TOF-дифрактометре легко реализуется параллельная одно-, двух- или трехмерная дифрактометрия обратного пространства кристалла. Время пролета дает развертку вдоль радиуса-вектора обратной решетки, а позиционные группы одно или двухкоординатного позиционно-чувствительного детектора – в поперечных

направлениях (рис. 3). Информация обо всей наблюдаемой области обратного пространства накапливается одновременно, что позволяет резко сократить время и упростить проведение эксперимента.



**Рис. 3.** Измеренное на TOF-дифрактометре двумерное распределение интенсивности от кристалла  $(\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5})\text{TiO}_3$  возле точки  $(1.5 \ 0.5 \ 0.5)$  обратной решетки. Видны главный и сателлитный (справа) пики. Развертка спектра по времени пролета (NT) и по углу рассеяния (NX) соответствует сканированию вдоль и поперек радиуса-вектора обратной решетки. Рисунок из работы [5].

Разрешающая способность TOF-дифрактометра для поликристаллов легко может быть доведена до  $\Delta d/d=0.003$ , в специальных случаях - до 0.0005 причем она слабо зависит от  $d_{hkl}$ , как правило, улучшаясь с ростом  $d_{hkl}$ .

Традиционно отмечаемой особенностью TOF-дифрактометра является также возможность вести измерения в фиксированной геометрии, что важно, например, при работе с камерами высокого давления.

Уже в первых исследованиях, выполненных на TOF-дифрактометрах, были подтверждены многие из предсказывавшихся их достоинств и, прежде всего, большая скорость набора информации. Кроме того, особо отмечался импульсный характер облучения образца пучком нейтронов, что позволяет и внешнее воздействие на образец реализовать в импульсном режиме, резко увеличить амплитуду этого воздействия и достичь величины, например, магнитного поля, не

достижимой в стационарном режиме. Как весьма перспективное направление на импульсном источнике нейтронов назывались исследования необратимых переходных и релаксационных процессов.

Дальнейшее развитие дифракции на импульсных источниках нейтронов подтвердило высказанные прогнозы, а в некоторых отношениях и превзошло их.

#### IV. СТРУКТУРНЫЕ ЗАДАЧИ, РЕШАЕМЫЕ НА СОВРЕМЕННЫХ TOF-ДИФРАКТОМЕТРАХ

Многочисленные и разнообразные нейтронографические исследования, ведущиеся в настоящее время на TOF-дифрактометрах, можно условно разбить на несколько типов, каждый из которых требует специального подхода к организации эксперимента. Например, современные требования к дифрактометру, на котором ведутся исследования монокристаллов, предполагают наличие двухкоординатного позиционно-чувствительного детектора (2D ПЧД) с хорошим  $\sim 0.2$  см пространственным разрешением, причем высокое разрешение по переданному импульсу, как правило, не обязательно. Наоборот, при структурном исследовании поликристаллов необходимо высокое разрешение по межплоскостному расстоянию ( $\Delta d/d \approx 0.001$ ).

##### A. Исследования монокристаллов

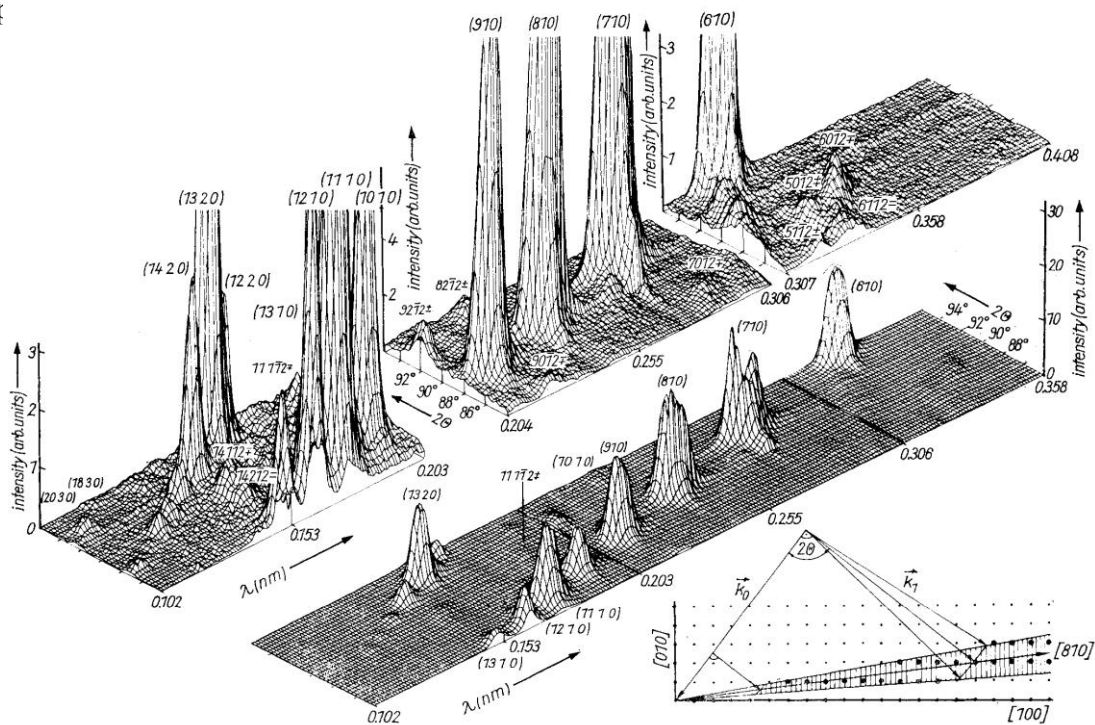
Основной упор в исследованиях монокристаллов на TOF-дифрактометрах делается на эксперименты, в которых реализуется основное их достоинство - возможность одновременного наблюдения большого объема обратного пространства при фиксированной геометрии. Для этого применяются позиционно-чувствительные или много-детекторные системы.

В ЛНФ ОИЯИ такой метод регистрации использовался начиная с 1980 года в основном для изучения доменных структур сегнетоэлектрических ( $\text{KD}_2\text{PO}_4$ ,  $\text{LiKSO}_4$ ) и сегнетоэластических ( $\text{KD}_3(\text{SeO}_3)_2$ ,  $\text{K}_2\text{ZnCl}_4$ ) кристаллов и их поведения при внешних воздействиях. Непрерывное сканирование обратного пространства необходимо и при изучении модулированных структур (атомных или магнитных) и переходов между соразмерной и несоизмерной фазами кристалла.

Типичным примером таких работ являются эксперименты с кристаллами  $Sr_{1-x}Ba_xNb_2O_6$ , (SBN) в которых наблюдается размытый фазовый переход в сегнетоэлектрическую фазу ( $T_C = 350$  К при  $x = 0.7$ ), что отражает релаксационный механизм фазового перехода. Дифракционные спектры имели весьма сложный характер (рис. 4) – наблюдалось расщепление позиций, спутники и сильное диффузное рассеяние [6].

Очевидно, что столь сложное распределение интенсивности полноценно может быть изучено только на TOF-дифрактометре, обеспечивающим непрерывное сканирование обратного пространства кристалла. Сильное влияние на интенсивности как дифракционных пиков, так и диффузного рассеяния оказывает электр

рефлексов типа (001) и (002) от кристалла SBN, прошедшего тепловую деполяризацию, сильно возрастает при воздействии электрических полей. В серии экспериментов по непрерывному сканированию обратного пространства кристалла SBN были наблюдаемы закономерности изменений интенсивности диффузного рассеяния, в частности, под действием электрического поля при комнатной температуре происходит уменьшение интенсивности диффузного рассеяния, причем начальный высокий уровень интенсивности резко уменьшается уже при небольших полях (рис. 5).



**Рис. 4.** Участок дифракционного спектра кристалла SBN, измеренный на TOF-дифрактометре с 1D ПЧД в сечении  $[hk0]$ . Вверху спектр представлен в увеличенном масштабе. Внизу справа показана ориентация сектора в направлении узла (810), ограниченного пределами  $\pm 2.5^\circ$  по углу Брэгга. Индексы Миллера основных пиков указаны в скобках, начиная от (6 1 0) до (14 1 0). Индексы спутников указаны без скобок, например, 5 0 1 2, со знаками, указывающими смещение вдоль  $a^*$  и  $b^*$ . Рисунок из работы [6].

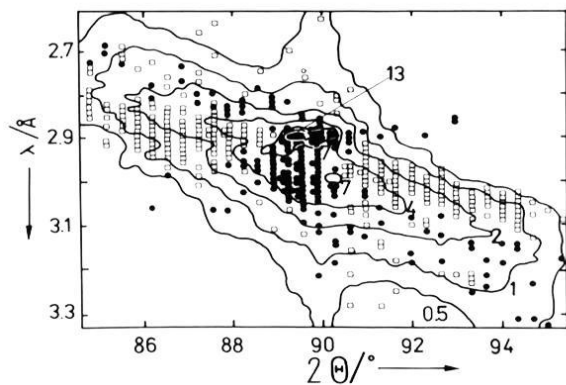


Рис.5 Изменения интенсивности диффузного рассеяния нейтронов в окрестности пика (002) кристалла SBN при включении ( $E = 3$  кВ/см) и выключении электрического поля. Рисунок из работы [7].

Анализ диффузного рассеяния показал, что существование малых полярных областей в матрице неполярной параэлектрической фазы и увеличение при охлаждении как их числа, так и объема отдельной области являются наиболее важной характеристикой процесса охлаждения кристалла при выключенном поле [7].

### **Б. Исследования поликристаллов с высоким разрешением.**

На импульсных источниках с коротким импульсом удовлетворительного уровня ( $\Delta d/d \approx 0.003$ ) разрешающей способности по межплоскостному расстоянию можно добиться уже при пролетной базе порядка 40 м. Для достижения разрешения порядка  $\Delta d/d \approx 0.001$  и лучше пролетное расстояние должно быть увеличено до 100 и более метров. Хорошо известным примером ТОФ-дифрактометра с такой разрешающей способностью является HRPD на источнике ISIS [8].

На источниках с длинным импульсом удлинение пролетной базы для достижения высокого разрешения практически невозможно, т.к. требуемые расстояния составляют слишком большую величину. На реакторе ИБР-2 для улучшения разрешающей способности дифрактометра для поликристаллов используется корреляционная фурье-дифрактометрия [9], которая позволила достичь разрешения по межплоскостному расстоянию  $\Delta d/d \approx 0.0009$  и сохранить достаточно высокую светосилу.

Одним из примеров успешного применения дифракции нейтронов высокого разрешения к изучению структуры поликристаллов и к анализу корреляций между структурой и

свойствами могут служить работы по выявлению структурных причин гигантского кислородного  $^{16}\text{O} \rightarrow ^{18}\text{O}$  изотопического эффекта в CMR-манганите  $(\text{La}_{0.25}\text{Pr}_{0.75})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$  (LPCM-75). Этот состав при низких температурах является АФМ диэлектриком, если используется изотоп  $^{18}\text{O}$ , тогда как состав с  $^{16}\text{O}$  при  $T < 110$  К становится металлом и около 85% объема образца упорядочено ферромагнитно [10]. Температурные зависимости структурных параметров образцов с  $^{16}\text{O}$  и  $^{18}\text{O}$  измерялись на фурье-дифрактометре HRFD (пример измеренного дифракционного спектра приведен на рис. 6).

На рис. 7 показаны температурные зависимости средней длины связи Mn-O и средних валентных углов Mn-O-Mn. В образце с  $^{18}\text{O}$  изменения этих величин с температурой очень небольшие и плавные, тогда как в образце с  $^{16}\text{O}$  при температуре ферромагнитного перехода ( $T_{\text{FM}} \approx 110$  К) они изменяются скачкообразно.

Следует подчеркнуть, что, несмотря на малую величину различий структурных характеристик образцов, высокое качество экспериментальных данных позволило их надежно зафиксировать.

В настоящее время в нейтронных лабораториях мира существуют несколько ТОФ-дифрактометров, обладающих разрешением на уровне одной десятой доли процента, которые открывают широкие перспективы для структурных исследований в физике, химии, биологии, материаловедении.

### **В. Дифракционные эксперименты в реальном времени**

Специфические особенности нейтронографии делают ее исключительно мощным методом изучения переходных процессов в конденсированных средах в реальном времени, т.е. с почти непрерывным слежением за происходящими в среде структурными изменениями. В случае необратимого процесса, например, такого, как химическая реакция, его наблюдаемость определяется условием  $t_s \leq \tau$ , где  $\tau$  - характерное время процесса,  $t_s$  - время измерения одного дифракционного спектра с достаточным для целей эксперимента уровнем статистики. Величина  $t_s$  зависит от потока нейтронов в первичном пучке, площади и рассеивающей способности образца, телесного угла детекторной системы и для наиболее

светосильных нейтронных дифрактометров на стационарных реакторах составляет 1-10 мин. На некоторых импульсных источниках нейтронов (ISIS, LANSCE) достигнуты примерно такие же времена. На реакторе ИБР-2 имеются возможности для анализа необратимых процессов в кристаллах с

временным разрешением около 1 мин, отдельные эксперименты были выполнены с разрешением 20 с и даже 2 с [11]. Пример эволюции дифракционных спектров в ходе фазового перехода в соединении  $\text{CuLi}_{0.1}\text{V}_{0.1}\text{Fe}_{1.8}\text{O}_4$  показан на рис.8.

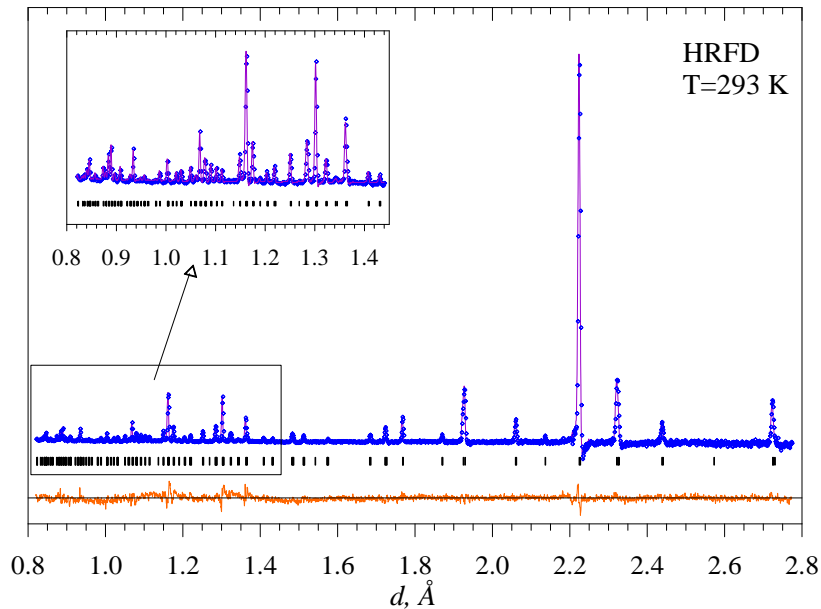


Рис. 6. Дифракционный спектр LPCM-75 с  $^{18}\text{O}$ , измеренный на HRFD при комнатной температуре и обработанный по методу Ритвельда. Показаны экспериментальные точки, рассчитанный профиль и разностная кривая, нормированная на среднеквадратичное отклонение в каждой точке. Штрихи под графиком указывают рассчитанные положения ядерных пиков. Рисунок из работы [10].

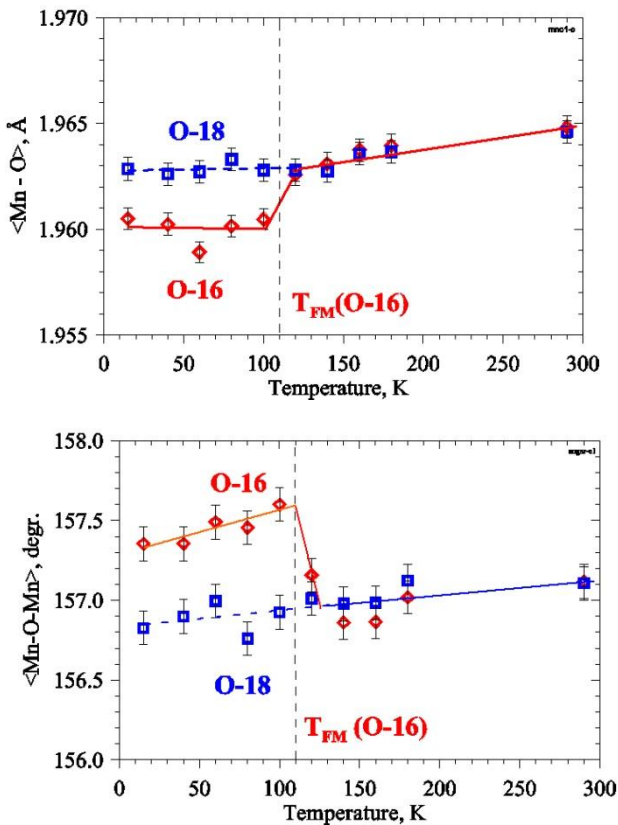


Рис. 7. Сравнение температурных зависимостей для средних расстояний Mn-O (слева) и среднего валентного угла Mn-O-Mn (справа) образцов LPCM-75 с  $^{16}\text{O}$  и  $^{18}\text{O}$ . Указана температура перехода образца с  $^{16}\text{O}$  в FM-состояние. Рисунок из работы [10].

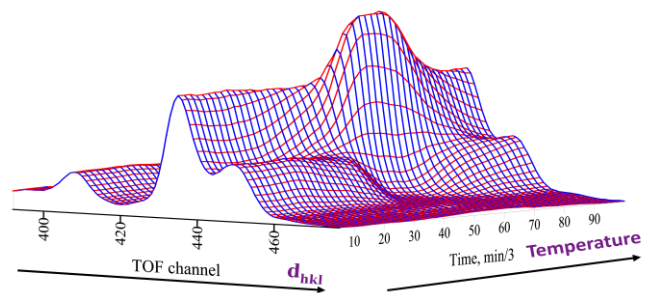


Рис. 8. Дифракционные спектры (регистрация каждые 80 сек) от замещенного феррита меди ( $\text{CuLi}_{0.1}\text{V}_{0.1}\text{Fe}_{1.8}\text{O}_4$ ) в характерном интервале межплоскостных расстояний при непрерывном нагревании от 400 К до 800 К с последующем охлаждением до 400 К со скоростью изменения температуры около 5 град./мин. Выше 740 К соединение находится в высокосимметричной кубической фазе, ниже этой температуры симметрия структуры становится тетрагональной. Рисунок из работы [12].

Последующий анализ совокупности спектров методом Ритвельда позволил определить зависимости от времени (т.е. от температуры) всех структурных характеристик кристалла [12].

### Г. Исследования микрообразцов при высоких давлениях

До последнего времени область применения нейтронных методов при исследовании поведения вещества при высоких давлениях, как правило, ограничивалась диапазоном до нескольких ГПа, что было связано с необходимостью использовать относительно большие объемы образца ( $\sim 1 \text{ см}^3$ ). В последнее

время появилась возможность расширить диапазон давлений до нескольких десятков ГПа, сочетая технику алмазных и сапфировых наковален и светосильную низкофоновую нейтронную дифрактометрию. На ИБР-2 такие работы начались сравнительно недавно, но уже первые эксперименты показали перспективность этого направления. Тщательная проводка нейтронного пучка, оригинальная конструкция детекторной системы позволили получить результаты близкие к рекордным в мире по минимальному объему образца и уровню достижимых давлений [13]. На рис.9 показан один из измеренных дифракционных спектров от образца, объем которого составлял около  $5 \text{ мм}^3$ .

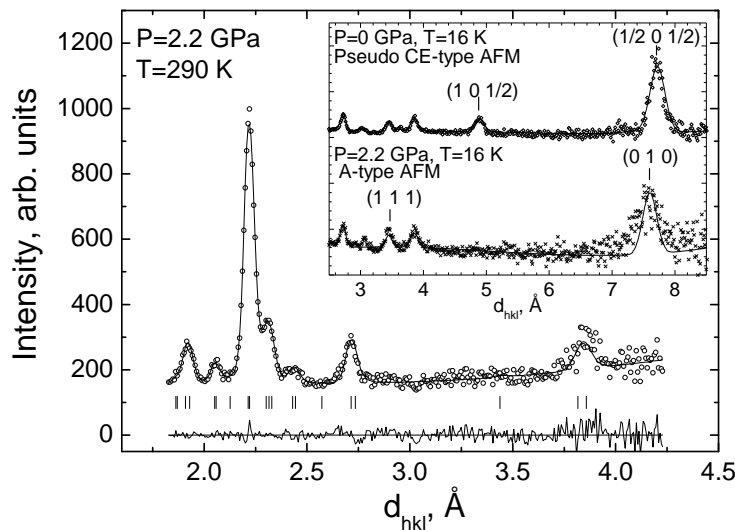


Рис. 9. Дифракционные спектры  $\text{Pr}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ , измеренные при  $P = 2.2 \text{ ГПа}$  и  $T = 290 \text{ К}$  (угол рассеяния  $2\theta = 92^\circ$ ),  $P = 0$  и  $2.2 \text{ ГПа}$ ,  $T = 16 \text{ К}$  (угол рассеяния  $2\theta = 45.9^\circ$ ; вставка), обработанные по методу Ритвельда. Показаны экспериментальные точки, вычисленный профиль и разностная кривая. Приведены индексы Миллера для наиболее интенсивных антиферромагнитных рефлексов. Рисунок из работы [13].

При увеличении давления до 2.2. ГПа наблюдаются четкие изменения дифракционных спектров, что свидетельствует о возникновении в кристалле АФМ состояния А-типа.

### Д. Прикладные исследования на TOF-дифрактометрах

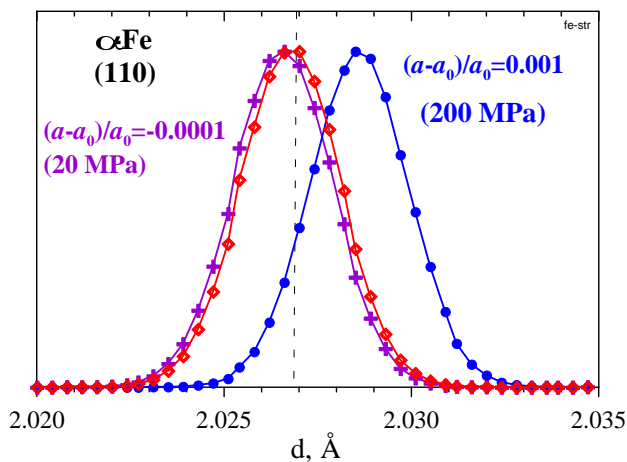
В последние годы на TOF-дифрактометрах обязательной областью применения дифракции нейтронов стали прикладные исследования, под которыми понимаются задачи важные с инженерной точки зрения. Типичным примером является определение с помощью дифракции нейтронов внутренних напряжений в объемных материалах, изделиях или деталях машин.

Основным достоинством дифракции тепловых нейтронов при изучении внутренних напряжений является их большая проникающая способность, позволяющей сканировать объем образца на значительной глубине (до 3 см в сталях и 10 см в Al), что особенно важно для исследования напряжений в технических конструкциях (см., например, [14]. Дифракция рентгеновских лучей, естественно, также используется для определения внутренних напряжений, но их проникновение в материал ограничивается долями миллиметра.

Остаточные или динамические механические напряжения приводят к однородному изменению параметров кристаллической решетки в сравнительно больших (на уровне долей миллиметра)



объемах материала. Соответственно дифракционные пики сдвигаются по отношению к положению пиков от недеформированного материала (рис. 10).



**Рис. 10.** Дифракционный пик (110) от недеформированного  $\alpha$ -Fe ( $d \approx 2.027 \text{ \AA}$ ), имеющего модуль Юнга  $E = 200 \text{ ГПа}$  и его сдвиг при нагрузке 20 МПа (налево) и 200 МПа (направо). Разрешение дифрактометра, на котором проведено измерение пиков,  $R \approx 0.001$ .

При неоднородных, случайных по величине и направлению искажениях решетки в пределах одного кристаллита возникают микронапряжения, приводящие к дисперсии межплоскостных расстояний и, соответственно, к уширению дифракционных пиков.

Долгое время, существенным ограничением метода являлась его сравнительно малая светосила, но современные специализированные нейтронные дифрактометры позволяют определять напряжения с пространственным разрешением 0.5 мм за разумное (порядка 1 часа) время измерения. Соответственно, может быть измерена карта распределения напряжений внутри материала или изделия.

На реакторе ИБР-2 прикладные исследования материалов осуществляются по нескольким направлениям, основными из которых являются изучение внутренних напряжений и текстуры в материалах, имеющих промышленные применения (детали узлов машин, конструкционные материалы, композиты, армированные системы и т.д.) и определение структуры и текстуры геологических материалов. Описание специализированных нейтронных дифрактометров предназначенных для этих целей можно найти по ссылке [15].

## V. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

За последние годы нейтронография на импульсных источниках нейтронов прошла впечатляющий путь развития, начало которому было положено еще в 1960-х годах. Ближайшие ее перспективы связаны, прежде всего, с вводом в строй новых мощных SNS, таких как ESS, а также с улучшением уже существующей техники. Это касается создания новых широкоформатных детекторов нейтронов с охватом телесного угла на уровне нескольких стерадиан и новых фокусирующих систем проводки нейтронных пучков. Ожидаются новые, более эффективные устройства, с помощью которых задаются условия на образце – камеры высокого давления, рефрижераторы замкнутого цикла, источники электрических и магнитных полей.

Можно уверенно утверждать, что комплексы дифрактометров, созданные на современных импульсных источниках, в том числе на реакторе ИБР-2, являются исключительно мощной экспериментальной базой, позволяющей решать практически любые задачи современной структурной нейтронографии.

## ЛИТЕРАТУРА

1. “Нейтроны и твёрдое тело” под ред. Р.П.Озерова, в 3-х томах, М., т. 1 “Структурная нейтронография”, 1979, т. 2 “Нейтронография магнетиков”, 1981, т. 3 “Нейтронная спектроскопия”, 1983. А.В. Белушкин, Д. Сангаа “Методы нейтронных исследований наноматериалов” (на монгольском языке), Улаанбаатар, 2011.
2. <http://www.psi.ch/sinq/>
3. <http://flnp.jinr.ru/5/>
4. <http://ess-scandinavia.eu/>
5. Балагуров А.М., Вахрушев С.Б., Набережнов А.А., Окунева Н.М., Савенко Б.Н., Сангаа Д. “Модуляция кристаллической решетки в кристалле  $\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5}\text{TiO}_3$ ” ОИЯИ, P14-90-423, Дубна, 1990.
6. А.М. Balagurov, F. Prokert, B.N. Savenko “Phase transition effects in the incommensurate modulated single crystal of  $\text{Sr}_{0.7}\text{Ba}_{0.3}\text{Nb}_2\text{O}_6$ ” phys. stat. sol. (a), 1987, v.103. pp.131-144.
7. F. Prokert, A.M. Balagurov, D. Sangaa, B.N. Savenko “Neutron diffraction study of the electric field influence on  $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$

- mixed crystals” *Ferroelectrics*, 1991, v.124, pp.121-126.
8. <http://www.isis.stfc.ac.uk/instruments/hrpd/>
  9. А.М. Balagurov “High resolution Fourier diffraction at the IBR-2 reactor” *Neutron News*, 2005, v.16, pp.8-12.
  10. А.М. Балагуров, В.Ю. Помякушин “Структурные аспекты гигантского кислородного изотопического эффекта в перовскитных оксидах марганца” *Кристаллография*, 2006, т.51 (5), с.120 – 132.
  11. А.М. Балагуров, Г.М. Миронова “Нейтронграфические исследования в реальном масштабе времени” *Кристаллография*, 1991, т.36, с. 314-325.
  12. А.М. Balagurov et al. “Neutron diffraction study of the structural phase transition in lithium and vanadium substituted copper ferrite” *phys. stat. sol. (a)*, 1993, v.136. pp. 57-65.
  13. Д.П.Козленко, Б.Н.Савенко “Влияние высокого давления на кристаллическую и магнитную структуру манганитов” *ЭЧАЯ*, 2006, т. 37, с. 5.
  14. Бокучава Г.Д., Балагуров А.М., Сумин В.В., Папушкин И.В. “Нейтронный фурье-дифрактометр ФСД для исследования механических напряжений в материалах и промышленных изделиях”, *Поверхность*, 2010, т.11, стр. 9.
  15. <http://flnp.jinr.ru/558/>

## Advanced Neutron Diffraction at Pulsed Sources

**А.М. Balagurov<sup>1</sup>, D. Sangaa<sup>1,2</sup>**

<sup>1</sup>*Frank Laboratory of Neutron Physics, Joint Institute for Nuclear Research, Dubna, Russia*

<sup>2</sup>*Institute of Physics and Technology, Mongolian Academy of Science, Ulaanbaatar, Mongolia*

The current achievements in neutron diffraction studies at pulsed neutron sources are described. After general consideration of the time-of-flight neutron diffraction, some special questions such as a high resolution powder diffractometry, single crystal structural analysis, investigations of the irreversible transition phenomena and micro-samples under high pressure, applied neutron diffraction studies are discussed.