

НОБЕЛЕВСКИЕ ЛЕКЦИИ ПО ФИЗИКЕ — 1994

Раннее развитие физики нейтронного рассеяния

К.Г. Шульц

(Нобелевская лекция. Стокгольм, 10 декабря 1994 г.)

PACS numbers: 29.30.Hs

Нейтроны были открыты Чедвиком в 1932 г., когда он обнаружил проникающую форму радиации, испускаемой металлическим бериллием при его активации α -частицами от радиового источника. Дальнейшие исследования показали, что это излучение состоит из нейтральных частиц, кинетическая энергия которых может быть обращена в тепло при их последующем неупругом рассеянии в среде легкими атомами. В силу принципа корпускулярно-волнового дуализма было ясно, что в процессе такой термализации Ферми тепловые нейтроны должны проявлять волновые свойства с де-Бройлевской длиной волны, сравнимой с межатомным расстоянием в твердых телах. А значит, при рассеянии нейтронов кристаллами, как и в случае рентгеновского излучения, возможно возникновение дифракционных эффектов. Первые эксперименты в 1936 г. косвенно подтвердили справедливость этой гипотезы.

К тому времени дифракция рентгеновских лучей зарекомендовала себя в качестве мощного инструмента изучения структуры и взаимодействий атомов в веществе, так что перспективы использования нейтронного излучения казались сомнительными из-за крайне низкой его интенсивности. Это препятствие было устранено в драматическое время начала войны — в 1939–1943 гг. Тогда Хан и Мейтнер открыли ядерное деление, а Ферми продемонстрировал пример стабильной системы, способной поддерживать в себе цепную реакцию нейтронов. И позже — сразу после опыта Ферми — был молниеносно разработан и построен полномасштабный ядерный реактор в Окридже (Тенесси), позднее прозванный "громадиной"¹.

Этот реактор — Clinton Pile — должен был дать первые осязаемые партии плутония и стать стартовой площадкой для пуска гораздо более производительных реакторов, установка которых намечалась в штате Вашингтон. Конструкция имела графитовые замедлители и водяное охлаждение, работая на мощностях

около 3,5 МВт и таким образом генерируя плотность потока медленных нейтронов порядка 10^{-12} нейтронов/см²·с. В то же время в Чикаго был спроектирован и построен другой завод, CP-3, где использовалось замедление тяжелой водой. В таблице приведены даты пуска этих (и послевоенных) ранних реакторов. Оба завода, Clinton и CP-3, действовали в военные годы, производя искусственные элементы и изотопы; в какой-то степени их нейтронное излучение было использовано и при получении некоторых крайне необходимых данных о сечениях рассеяния.

Таблица. Даты пуска первых реакторов

1942 (декабрь)	Демонстрация системы Ферми (Чикаго)
1943 (ноябрь)	Clinton Pile, графит, 3 МВт
1944	Argonne CP-3, тяжелая вода
1947	NRX (Челк-Ривер)
1948	BEPO (Харуэлл)
1950	LITR, обогащенный уран (Окридж)
1950	BGRR (Брукхэйвен)

Реактор Clinton Pile имеет форму куба с ребром около 7 м и представляет собой совокупность графитовых "стержней" — прямоугольных блоков длиной 150 см, имеющих в поперечном сечении квадрат со стороной примерно 10 см. Топливом служит чистый металлический уран: он находится в системе каналов внутри графита, ведущих от загрузочной стороны назад, к выпускной части. Урановые цилиндрические стержни диаметром около 2 см и длиной 10 см тщательно запакованы в алюминиевые контейнеры. Охлаждающий воздух продувается вдоль каналов в сторону выпускной части с помощью больших вентиляторов. Ход ядерной реакции управляется перемещением различных поглощающих брусков внутри реактора. Со всех сторон установка окружена защитным бетонным корпусом толщиной около 1,5 м. На всякий случай в этом корпусе проектировщики оставили несколько каналов, чтобы иметь доступ к активной части реактора.

Во время войны на выходе одного из таких каналов располагался одноосный спектрометр. Он служил источником моноэнергетических нейтронов в экспериментах по измерению сечений рассеяния. В конце войны Эрнст

¹ Один из переводов слова "pile", которое впоследствии приобрело еще одно устойчивое значение: "ядерный реактор"

Воллан решил установить двусосный спектрометр для наблюдения полных дифракционных картин: первая ось должна была обеспечить монохроматический пучок с интенсивностью, достаточной для исследования дифракционных картин на второй оси. Воллан выписал в Окридж спектрометр, на котором он раньше провел большую часть экспериментов по рентгеновскому рассеянию в газе, работая над своей диссертацией под руководством Артура Комптона в Чикаго. Этот спектрометр имел коаксиальную регулировку положений образцов и детектора. Для того чтобы обеспечить больший объем загрузки нейтронного детектора с соблюдением необходимой защиты, спектрометр нужно было модифицировать: были смонтированы соединительные тросы, ведущие к шарнирам, закрепленным на потолке прямо над осью спектрометра.

Управление спектрометром никак не было автоматизировано, и для Воллана и его давнего коллеги Р.Б. Сойера наступил мучительный период кропотливого сбора данных, ставших в начале 1946 г. первым свидетельством нейтронных дифракционных картин в поликристаллах NaCl, а также в легкой и тяжелой воде. Мне показали эти картины во время моей поездки в Окридж весной того же года перед тем, как я сам туда переехал и присоединился к исследованиям Воллана в июне. На рис. 1 показана часть дифракционной картины в NaCl, и хотя фон достаточно велик, видно, что дифракционные пики вполне могут быть измерены и описаны количественно. Последнее было особенно важно для Воллана, который надеялся, что дифракция на порошке разрешит неопределенности с интенсивностями в монокристаллах, вызванные эффектами затухания. Дифракционные картины в легкой и тяжелой воде, в свою очередь, должны были разрешить вопрос о возможном вкладе атомов водорода (и дейтерия) в диффузные картины в жидкостях, аналогичные для случая нейтронной дифракции. Позже были замечены некоторые различия когерентных свойств двух картин, но попыток объяснить это сделано не было.

В первое время работы с этим спектрометром основное внимание было сконцентрировано на попытках объяснить интенсивности, наблюдаемые в дифракционных картинах, как в случае когерентных дифракционных

пиков, так и при диффузном рассеянии. Единственными надежными количественными результатами, на которые можно было опереться в то время, были значения сечений полного рассеяния и поглощения, измеренные для многих элементов в случае тепловых нейтронов. Хотя и можно было предположить, что эти величины дадут полную интенсивность во всей дифракционной картине, факторы наличия изотопов у некоторых элементов, возможных вкладов амплитуд рассеяния состояний с другими спинами и допущений теплового беспорядка и возбуждений нужно было учитывать каждый раз конкретно для данного случая. Продвижение в понимании и исключении этих факторов в измерениях шло довольно медленно из-за изнурительной процедуры сбора данных на этой установке, имеющей лишь ручное управление.

К концу первого года работы к нам присоединились молодой инженер Мильтон Марни, помогавший в утомительном процессе сбора данных, и два добровольца — ученые-физики Уильям Дэвидсон и Джордж Мортон из Окриджской специальной школы. Эта школа, образованная в конце 1946 г., была призвана принимать в Окридже на длительный период лучших ученых из академических, промышленных и правительственных учреждений. В этот срок ученые могли посещать лекции, работать совместно с исследовательскими группами и в целом приблизиться к новым техническим и научным рубежам, достигнутым за военное время. Дэвидсон и Мортон заинтересовались нашей работой по рассеянию нейтронов и помогали нам в регистрации данных. Вскоре Мортон — большой знаток технических приспособлений — не выдержал этой рутины и решил сконструировать автоматизированную систему управления, которая позволила бы пошаговое сканирование при измерении интенсивности с записью результатов. Идея обрела реальность в виде конструкции из автомобильных двигателей, поводковых патронов, микропереключателей и, самое ценное, записывающего устройства для показаний нейтронного счетчика. Прежде чем все заработало, прошло несколько месяцев, и как только это случилось, у нас наладился непрерывный и автономный сбор данных — очень важный шаг в реализации нашей программы.

Параллельно с этими усовершенствованиями технического оснащения проводились регулярные модификации кожуха, защищающего монохроматический кристалл и подвижный детектор внешнего спектрометра. Первоначально интенсивность фона в дифракционных картинах была сравнима с пиковой интенсивностью (это видно на рис. 1), и на измерение фона уходило примерно столько же времени, сколько на изучение самой картины. Частью программы автоматизации системы было периодическое измерение фоновой интенсивности путем введения в падающий пучок активируемого соленоидом кадмиевого фильтра.

Имея в распоряжении новую систему сбора данных, мы вернулись к нашей первоначальной программе классификации различных элементов в соответствии с их амплитудами когерентного рассеяния и изучения ряда новых примеров, в которых дифракция нейтронов способна дать больше информации, чем рентгеновское рассеяние. В частном случае моноизотопного элемента с нулевым спином ядра (кислород и углерод почти попадают в эту категорию) амплитуда когерентного рассеяния, дающая пик когерентной интенсивности в дифрак-

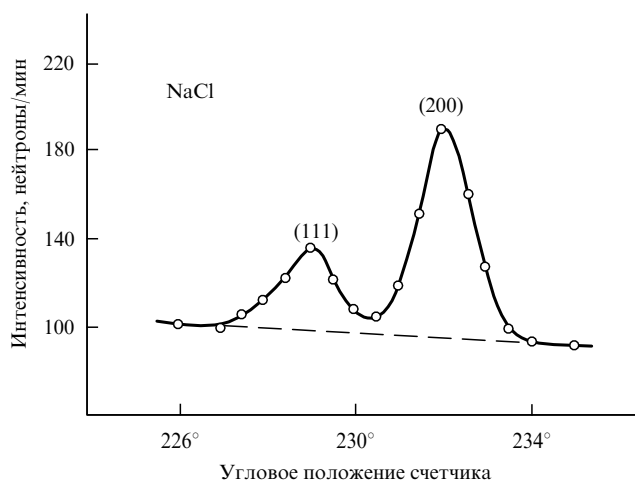


Рис. 1. Часть первой дебаграммы, полученной на реакторе Clinton Pile

ционной картине, может быть получена из полного сечения рассеяния. Ее величина может в дальнейшем являться опорным стандартом при количественных измерениях дифракционных свойств других элементов в комбинациях с этим стандартным элементом. Такая программа классификации проводилась в жизнь на протяжении нескольких лет до тех пор, пока не стали доступными чистые изотопы.

Почти в самом начале исследований было обнаружено странное свойство распределения интенсивностей: диффузное рассеяние дает вклад в дифракционную картину больше ожидаемого. Тщательные измерения интенсивностей по абсолютной шкале показали, что диффузная интенсивность больше, чем интенсивность, обусловленная диффузным тепловым рассеянием или изотопической некогерентностью и некогерентностью вследствие ядерного спина. В конце концов парадокс удалось объяснить множественным рассеянием внутри образца. Этот новый эффект характерен именно для рассеяния нейтронов и никогда не наблюдался в аналогичных экспериментах по рентгеновскому рассеянию.

Усовершенствование оборудования и лучшее понимание происхождения различных компонент, наблюдаемых в дифракционных картинах, позволило нам переключить свое внимание на важный кристаллографический случай водородсодержащих кристаллов. К тому времени было ясно, что амплитуда когерентного рассеяния нейтронов в водороде должна быть небольшой, поскольку она может быть получена из измерений полного рассеяния нейтронов орто- и параводородом. Однако точность экспериментов не позволяла установить ни ее значение, ни арифметический знак. Кроме того, имелись подозрения, что атомы водорода могут продемонстрировать аномальное по амплитуде тепловое движение, которое подавит когерентное рассеяние. Все встало на свои места после того, как были получены дебаграммы для NaH и NaD, часть которых показана на рис. 2. Анализ интенсивностей в этих дифракционных картинах позволил вычислить амплитуды рассеяния водорода и дейтерия (отличающиеся знаком) и показал, что тепловые колебания центров атомов водорода имеют вполне нормальную амплитуду. Большое значение диффузного рассеяния в случае NaH есть следствие аномального по величине некогерентного (обусловленного ядерным спином) рассеяния на водородных центрах.

Другой интересной водородсодержащей структурой, привлечшей наше внимание, был обычный лед. Из экспериментов по рентгеновской дифракции было известно, что в данной структуре атомы кислорода расположены в вершинах тетраэдров. Положения же атомов водорода в этой структуре оставались невыясненными, и на этот счет существовало несколько гипотез. На рис. 3 изображена дебаграмма образца из дейтериевого льда. Ее изучение явно подтверждает справедливость полуводородной модели Паулинга, изображенной на рис. 4. В процессе изготовления порошковых образцов льда D₂O перед нами возникли новые проблемы. Для замораживания образцов был построен новый криостат (с сухим охладителем на твердом ацетоне), прозванный кем-то "айсбольной машиной"².

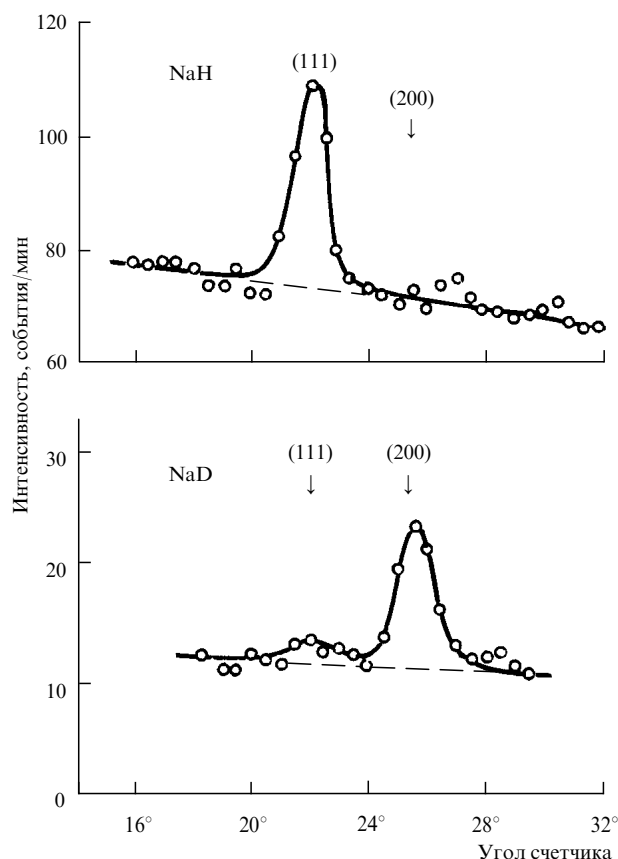


Рис. 2. Дифракционные картины для NaH и NaD (видно, что водород не влияет на характер картины)

Парообразный D₂O осаждался на внутреннюю поверхность цилиндрической трубки криостата, снимался и тонкими слоями упаковывался для предотвращения загрязнения обычной атмосферной влагой. В последующие два года были изучены и другие водородсодержащие структуры, в основном, гидриды переходных металлов и тяжелых атомов, включая крайне интересный аномальный случай — гидрид урана.

В середине 1949 г. к первому спектрометру на выходе пучка был пристроен второй. Этот спектрометр (тоже двусосный) вправе называться первым предшественником современных нейтронных спектрометров. Его части были специально спроектированы для использования в экспериментах с нейтронами, а не являлись простой переделкой компонент установок для изучения рентгеновского рассеяния. Элегантный цилиндрический кожух для монохроматического кристалла помещался на массивном основании, благодаря чему можно было легко менять направление возбуждающего пучка и его длину волны. Спектрометр для изучения образцов крепился на кожухе монохроматора и был теперь достаточно прочен, чтобы выдержать счетчик без добавочных поддерживающих тросов, необходимых в предыдущей установке.

Наряду с использованием этих спектрометров, в которых интенсивности при дифракционных эффектах измерялись с помощью чувствительных к нейтронам трубок-счетчиков, было заманчиво использовать фотографическую регистрацию, нашедшую широкое применение в экспериментах с рентгеновскими лучами. Нам было ясно, что фотопленка должна быть очень чувствительной к нейтронному излучению, и вплотную к ее

² Игра слов: ice — лед, base-ball — бейсбол (англ.).

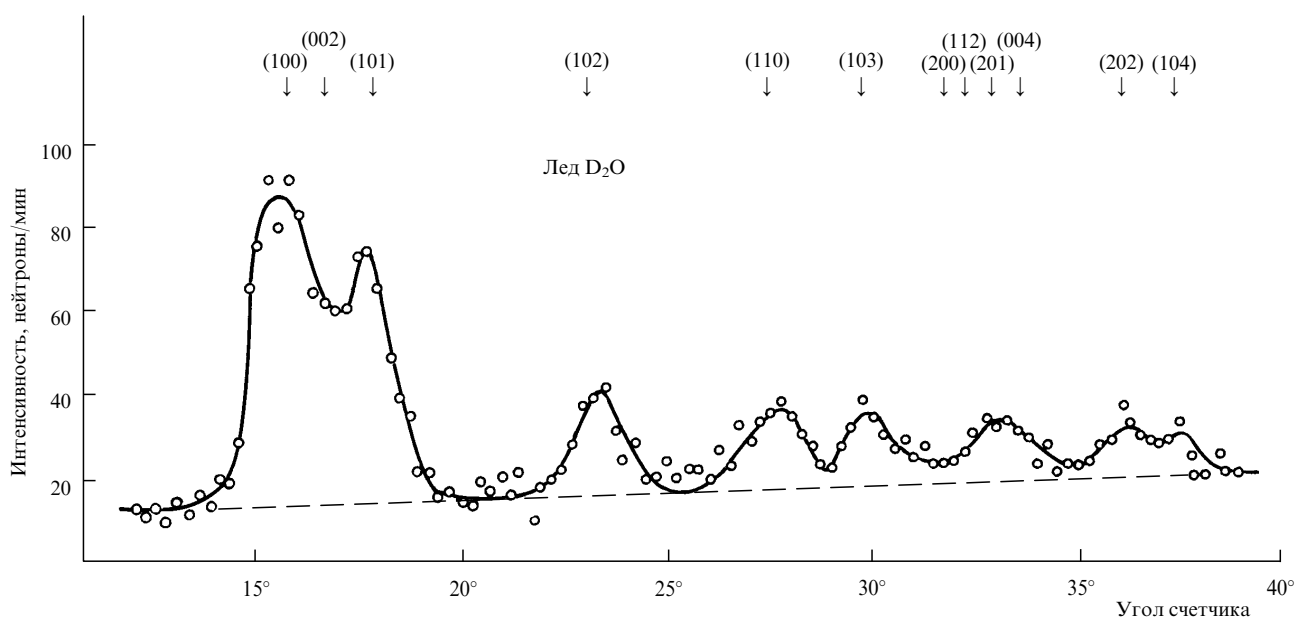


Рис. 3. Дифракционные картины для порошка льда D_2O

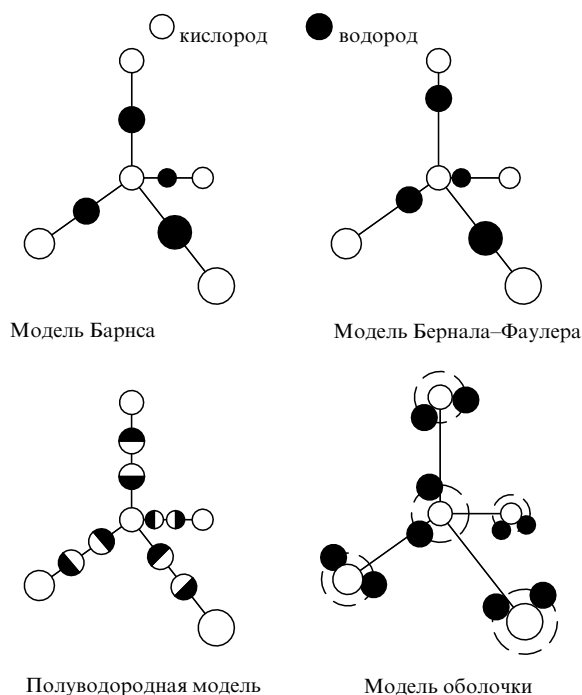


Рис. 4. Различные модели расположения атомов водорода для льда

эмульсии придется установить конвертирующий экран. После серии попыток мы обнаружили, что для этого вполне подойдет индиевая пластинка: индий имеет значительную величину сечения поглощения тепловых нейтронов, испуская при своем распаде бета-частицы, которые и будут воздействовать на пленку. Такой датчик с защитным экраном был использован для

получения первой нейтронной лауэграммы для образца кристалла $NaCl$ с временем экспозиции около 10 часов. Прямой нефильтрованный пучок от реактора был пропущен сквозь длинный экранирующий коллиматор и направлен на кристалл, в 10 см от которого находилась пленка. Среди всего того, что можно было видеть на этой первой лауэграмме — ярко выраженное двоение пятен Лауэ. Это нас сначала очень озадачило; впоследствии выяснилось, что двоение вызвано двойниковым срастанием выбранного нами первого кристалла. Также на фоне лауэграммы можно было заметить серию полос, идущих сверху вниз. Их появление обязано клейкой ленте-скотчу, которой соседние полоски индия были скреплены друг с другом. Поэтому можно сказать, что это не просто первая нейтронная лауэграмма, но и первая нейтронная рентгенограмма!

В моем кратком описании первых нескольких лет исследований нейтронного рассеяния в Окридже недостает упоминания о том, что многие другие коллеги и соавторы, кроме названных мною, принимали в них участие. Им — мое сердечное признание, так же как и другим сотрудникам физического факультета, и администрации окриджской лаборатории за неизменную поддержку. Но больше всего я обязан совместной работе, сотрудничеству и близкой дружбе, продолжавшимся почти десятилетие, с Эрнстом Волланом, который первым открыл для меня удивительный мир нейтронного рассеяния. Жаль, что он не дождал, чтобы разделить доставшиеся мне сегодня почести.

(Перевод с англ. А.В. Субботина)