

NAGYFELBONTÁSÚ REPÜLÉSI IDŐ DIFFRAKTOMÉTER A BUDAPESTI NEUTRON KUTATÓKÖZPONTBAN

SÁNTA ZSOMBOR

MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézet, H-1525, POB. 49, Budapest

email: santa@szfki.hu

Kivonat

A Budapesti Kutatóreaktorban befejeződött a berlini Hanh-Meitner intézet közreműködésével készült TOF (Time of Flight, repülési idő) diffraktométer telepítése és elkezdődtek az első kísérletek. A berendezés által nyújtott lehetőségeket, képességeit a még készülő nagyfelületű helyzetérzékelő detektorral lehet majd teljes mértékben kihasználni. Az intenzív termikus neutronnyaláb, a hátraszórásos mód alkalmazása és a hullámsáv széles tartományban való megválaszthatósága egyaránt alkalmassá teszik a rendszert teljes diffrakciós spektrum felvételére és a Bragg csúcsok alakjának vizsgálatára. Így a módszer alkalmazható kristályos (ásványi illetve fémek) anyagok azonosításában és a technológiai folyamatok vizsgálatában.

Abstract

The TOF neutron diffractometer installed at the Budapest Research Reactor in collaboration with the Hahn-Meitner Institute is ready for preliminary measurements; it will become usable to its full capabilities only with the large-surface detector. The instrument with wide range of variable diffraction parameters and with the intense thermal neutron beam is capable to get full diffraction spectra as well as to study the Bragg peaks in high resolution mode, i.e. to identify crystalline (mineral and metal) materials and investigate the preparation mode of objects.

KULCSSZAVAK: NEUTRON DIFFRAKCIÓ, REPÜLÉSI IDŐ DIFFRAKTOMÉTER, ARCHEOMETRIA

KEYWORDS: NEUTRON DIFFRACTION, TIME OF FLIGHT DIFFRACTOMETER, ARCHAEOLOGY

Bevezetés

A neutronok elektromos töltéssel nem rendelkező elemi részecskék. A neutron kölcsönhatása az anyaggal nem a rendszámától függ, mint a röntgen sugárzás esetén, hanem atommagonként más, és a szórás hosszal (b) rendelkezik. Közeli rendszámú elemeknek valamint izotópok esetén a szórás hosszak nagyon különbözőek lehetnek, ami az anyagok szerkezetvizsgálatban egyedülálló lehetőséget nyújt.

A nagyfelbontású TOF diffraktométer az archeometriai mérésekben fontos szerephez juthat tárgyak roncsolásmentes szerkezetvizsgálatában, de elemanalitikai mérésekre alkalmatlan.

Módszer

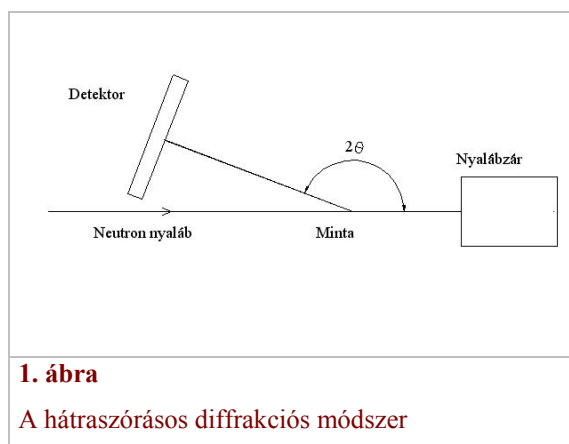
1. A pordiffrakció és a TOF monokromatizáció

Bocsássunk egy monokromatizált hullámhosszúságú részecske (jelen esetben neutron) nyalábot egy ismeretlen belső szerkezettel rendelkező mintára (1. ábra). Ha a mintában minden orientációjú kristallit előfordul (ilyenek a porminták és a fémtárgyak), lesznek olyan 2θ

szöggel jellemzett irányok, amelyeknél hullámerősítést tapasztalunk (Bragg-csúcsok). Ez a pordiffrakciós mérési elv alapja. A Bragg-képlet segítségével kiszámítható a rácsszerkezet állandója, ha ismerjük a mintára szórt neutronnyaláb hullámhosszát.

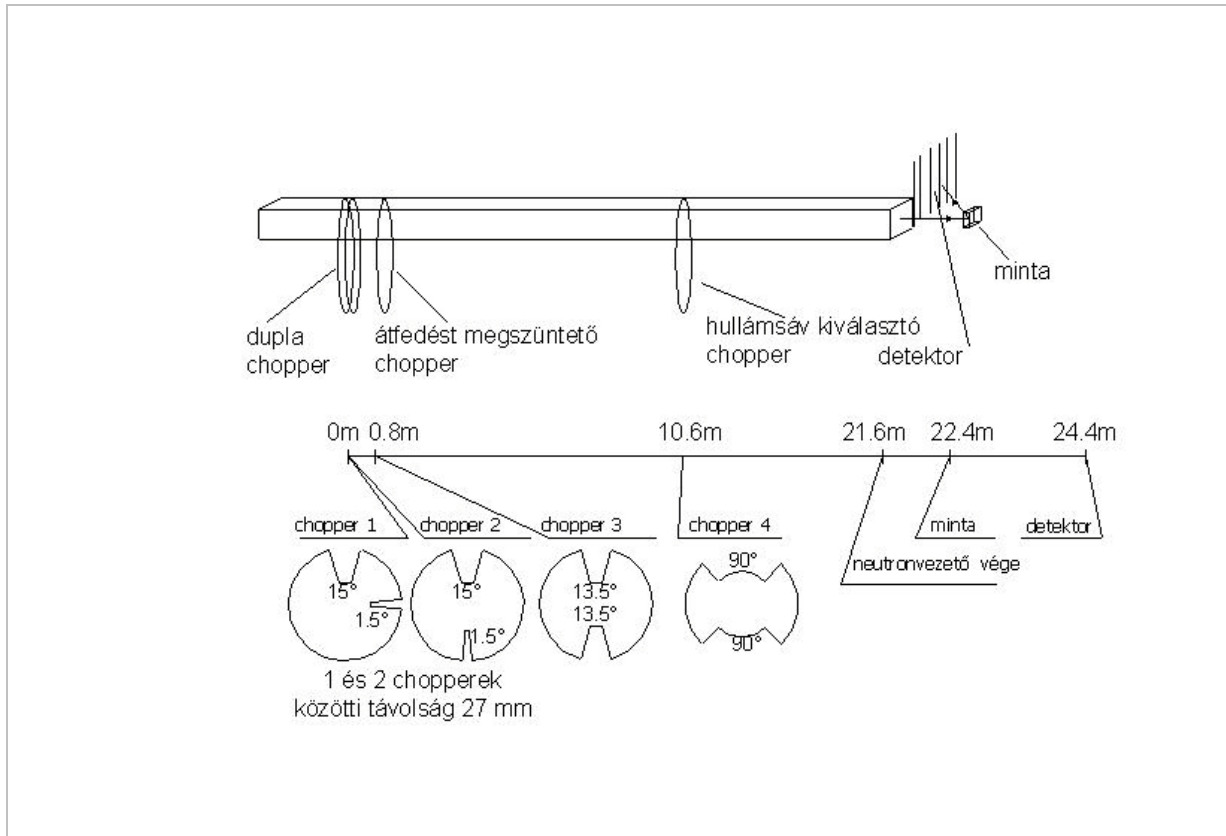
$$n\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta_{hkl}, \quad (1)$$

ahol az n egész szám, d_{hkl} a rácállandó, θ_{hkl} pedig a beeső és a szóródott nyaláb közötti szög, ahogy az 1. ábrán látható.



1. ábra

A hátraszórásos diffrakciós módszer



2. ábra

Az ábrán a nyalábszaggatókon lévő réseket valamint a szaggatók, a minta és a detektor távolságát az első szaggatóhoz viszonyítva ábrázoltam

Ha a szög helyett a hullámhosszat változtatjuk, a csúcok a hullámhossz függvényében jelennek meg az (1) képletnek megfelelően. Hátraszórásnál $\sin(\theta)$ értéke közel 1, így a képlet az $n\lambda=2d$ alakra egyszerűsödik, és a rácsparaméter pontossága nem függ a szög hibájától.

2. A repülési idő diffraktométer

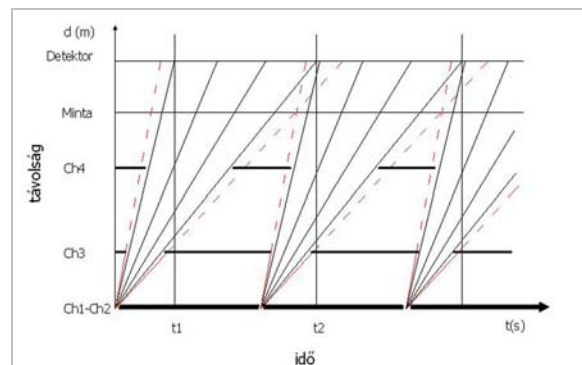
A berendezés alapvetően a neutronvezetőből, négy nyalábszaggató tárcsából (chopper), mintatartó asztalból, detektorból valamint sugárvédelmi célú árnyékoló elemekből áll.

A **2. ábrán** a nyalábszaggatókon lévő réseket, valamint a szaggatók, a minta és a detektor távolságát az első szaggatóhoz viszonyítva ábrázoltam. A szaggató tárcsa anyaga szénszál aszalt epoxigyanta, ami GdO_2 tartalmú neutronelnyelő réteggel van bevonva. A diffraktométer jelenlegi detektor négy He_3 ionizációs kamra.

A **3. ábrán** látható, hogy a Ch1 és Ch2 chopperek a folytonos neutron nyalábból szaggatott polikromatikus impulzusokat hoznak létre.

A 3. szaggatónak (Ch3) az átfedések megszüntetésében, valamint a folytonos hullámhossz-tartományból kivágott $\Delta\lambda$ hullámsáv

elsődleges kialakításában van szerepe, az átfedéseket a **3. ábrán** piros vonallal jelöltem. Az átfedéseket az adott $\Delta\lambda$ hullámhossztartományon kívül eső neutronok kivágásával, valamint az előző impulzus teljes kitakarásával a 4. nyalábszaggató szűri ki. A t_2 és t_1 közötti időkülönbséget, a periódusidőt az első két szaggató forgási sebessége határozza meg: $t_2 - t_1 = 60/N$ (s), ahol N a percenkénti fordulatszám.



3. ábra

A neutronok út-idő diagramja

Eredmények

A TOF berendezés előzőleg a budapesti kutatóreaktor 10. számú csatornáján, a hidegforráson lévő tesztnyalábon volt felállítva. (Bleif et al. 2000). Az előzetes mérések kimutatták, hogy a berendezés működőképes és lehetővé teszi a nagyfelbontású méréseket is. Ez a nyaláb azonban más célokra készült és a 2 Å-nél (1 Ångström = 0,1 nm) rövidebb hullámhosszú neutronokat kiszűri. A továbbiakban döntés született a berendezés áthelyezéséről a BNC Kutatóreaktor 1-es nyalábjára, ahol a neutronvezető egyenes vonalú kiépítése lehetővé teszi a 0,7Å-2Å közötti hullámhosszú neutronok alkalmazását is, bár a spektrum így a hosszabb hullámhossztartományban szegényebb. Az alumínium-oxid kerámián mért diffrakciós spektrumokon (4. és 5. ábra) jól megfigyelhetők a neutronvezető által kivágott, 2Å alatti, neutronokkal keltett diffrakciós csúcsok (az ábrákon A-val jelölve) hiánya, ill. meglétük az új nyaláb esetén.

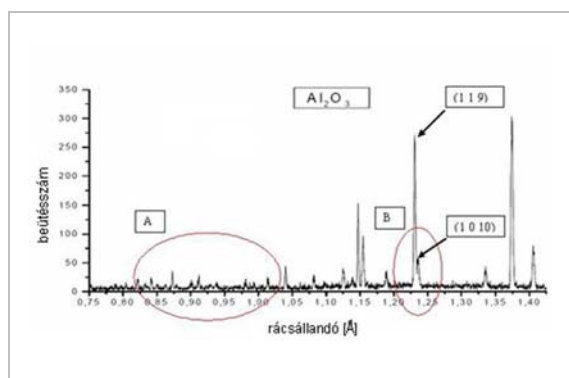
A BNC TOF diffraktómetert nagyfelbontású módban használjuk (Peters et al. 2006). A 6. ábrán a különböző rácsávolságokat tüntetem fel, valamint a rácsávolságok különbségét, amit Δd -vel jelöltem. A TOF diffraktómetér felbontása $\Delta d/d=1 \cdot 10^{-3}$, amely érték valamelyest javulni fog a kétdimenziós detektor használatával. Hasonló mértékű felbontás a modern, szinkrotronsugárzást használó röntgen diffraktómetereken is elérhető (ESRF 2006).

Gyakorlati szempontból különbséget a mintaelőkészítés (mintavétel, felülettisztítás) valamint az erősen eltérő nyalábátmérők jelentenek: neutron esetén nincs szükség különösebb mintaelőkészítésre, a röntgen

diffrakciós mérések esetén a nyalábátmérő néhány tízed milliméter nagyságrendű, ami a mérések során csak lokális információt ad a minta felületéről (Kockelmann & Kirfel 2004).

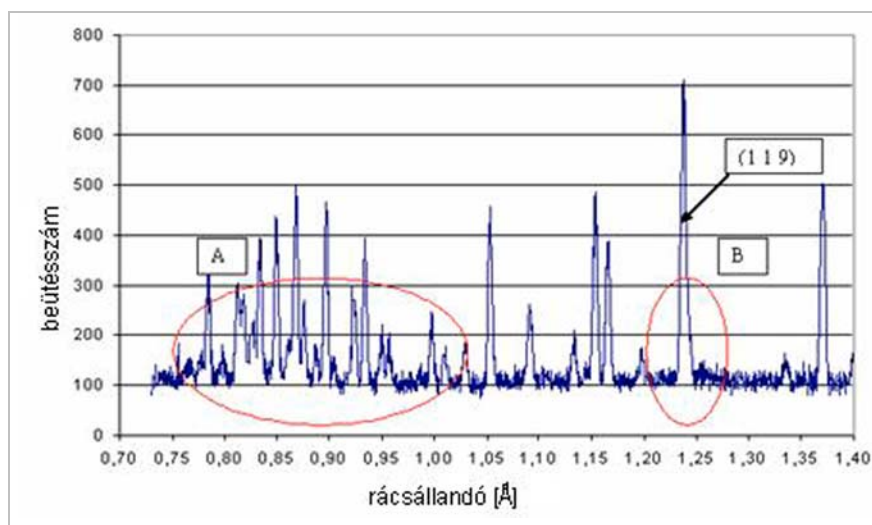
A 7. ábrán a különböző rácsávolságoknak megfelelő diffrakciós csúcsok láthatók. Abban az esetben, ha rossz felbontással mérünk, a két diffrakciós csúcs helyett csak egy takaró görbét fogunk látni. Ez a jelenség jól megfigyelhető a 4. és az 5. ábra összehasonlításánál. Észrevehető a B-vel jelölt helyeken, hogy a 4. ábrán az Al_2O_3 , (1 1 9) diffrakciós csúcs mellett megjelenik egy kisebb Al_2O_3 , (1 0 10) csúcs, ami az 5. ábrán nem látható (ez kisebb felbontással készült, hogy szemléltethessük a rossz felbontás hátrányait).

A nagyfelbontású diffraktómeterral megmérhető továbbá a diffrakciós csúcsok félérték szélessége, amiből következtetni lehet az adott mintára alkalmazott mechanikai vagy hőkezelésre (8. ábra).



4. ábra

A 2000-ben Al_2O_3 mintán mért diffrakciós spektrum ($\lambda \geq 2 \text{ Å}$)

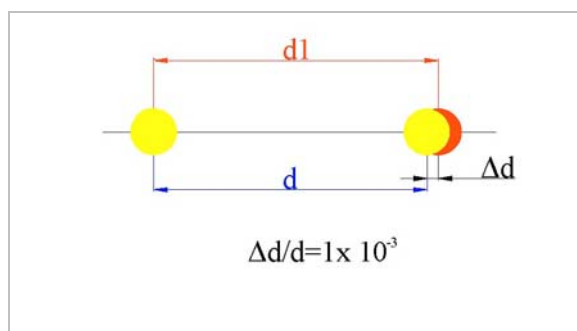


5. ábra

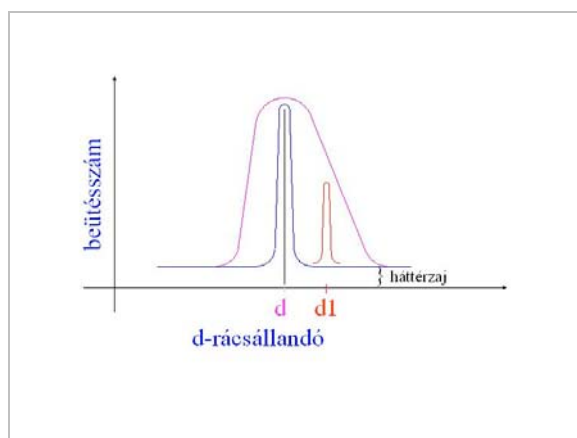
A 2005-ben Al_2O_3 mintán mért diffrakciós spektrum ($\lambda \geq 1.4 \text{ Å}$)

1. táblázat. A TOF diffraktométer adatai

Teljes repülési úthossz	L=30 m
Sávszélesség $\Delta\lambda$	0,08 nm (50 Hz) -tól 0,3 nm (200 Hz)-ig
Felbontás $\Delta d/d$	$1 \cdot 10^{-3}$, $\lambda=0,1$ nm-nél
Neutronvezető keresztmetszet	25×100 mm ²
Max. fordulatszám a Ch1 és Ch2 -nél	12000 rpm
Max. forgás a Ch3 és Ch4 -nél	6000 rpm
Detektor méret	600×800 mm ²
Detektor szög	160 ⁰ -170 ⁰
Detektor minta távolság	2,5 m

**6. ábra**

Különböző rácstávolságok és a TOF diffraktométerrel elért felbontás

**7. ábra**

Különböző rácstávolságok diffrakciós csúcsa

Következtetés

Miért alkalmasak a neutronok régészeti anyag vizsgálatára?

A TOF neutron diffrakciós spektrometriának számos előnye van:

- Mintaelőkészítésre (mintavétel, mintavékonyítás, felülettisztítás, vákuum stb.) nincs szükség.
- Lehetséges többször 10 cm-es nagyságú minták vizsgálata is, valamint nagyobb mintákon különböző pontoknak a mérése és összehasonlítása.
- A maximálisan megvilágítható felület nagysága 25×100 mm².
- A minták tipikus térfogata 1-50 cm³.
- A minta környezetét szükség szerint lehet alakítani a mérések során:
- nagy nyomás vagy vákuum
- magas vagy alacsony hőmérséklet
- mágneses tér alkalmazása
- A neutronok kölcsönhatása a mágneses momentummal

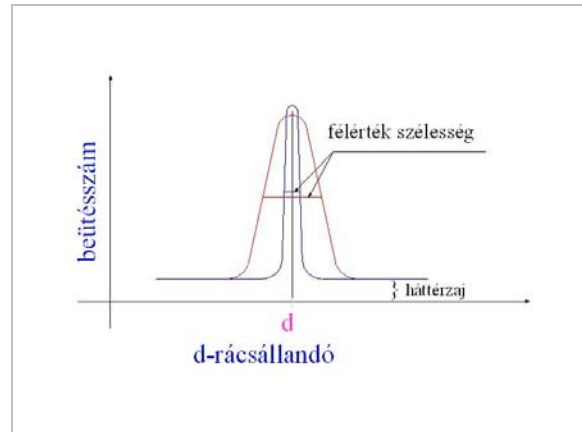
A neutronok kölcsönhatása az anyaggal teljesen különbözik a röntgenfotonok és elektronok kölcsönhatásaitól.

Archeometriai mérési lehetőségek a TOF diffraktométeren – néhány példa

1. Vasmintákon belső feszültség és textúra (szemcseszerkezet) mérés esetén következtetni lehet a mintán elvégzett kovácsolás és hőkezelés folyamataira (Leever et al. 2006).
2. Bronzminták esetében fázisanalízis, szemcseszerkezet vizsgálat és vonalprofil-analízis végezhető, amiből az ötvözés mértékére és a hőkezelés módjára lehet következtetni (Kockelmann & Kirfel 2004). A Magyar Nemzeti Múzeum közreműködésével bronzbalták és bronzcsatok neutroindiffrakciós mérése megtörtént az adatok feldolgozása folyamatban van, egy későbbi cikkben megjelentetjük.
3. Drágakövek azonosítása akár teljesen fedett állapotban is.
4. Ásványi összetétel meghatározása kő, kerámia stb. mintákban.

Irodalom

- BLEIF, H. J., WECHSLER, D. & MEZEI, F. (2000): TOF powder diffractometer on a reactor source. *PHYSICA B*, **276-278**, 181-182.
- PETERS, J., BLEIF H. J., KÁLI, GY., ROSTA, L. & MEZEI, F. (2006): Performance of TOF powder diffractometers on reactor sources. *PHYSICA B*, Vol (385-386), 1019-1021.



8. ábra

Diffrakciós csúcsok és félérték szélességei

KOCKELMANN, W. & KIRFEL, A. (2004): Neutron diffraction studies of archaeological objects on ROTAX. *PHYSICA B*, **350**, 581-585.

LEEVEER, S., VISSER, D., KOCKELMANN, W., & DIK, J. (2006): An archeometallurgical study of two harquebusier breastsplates using time-of-flight neutron diffraction. *Physica B* **385-386**, 542-544.

<http://www.esrf.eu/UsersAndScience/Experiments/HRRS/ID28/>