**Study of the properties and applications of nanodiamond reflectors of low-energy neutrons**

Alexander Nezvanov

At the moment, many neutron research centers around the world are aiming to increase the range of useful neutrons while lowering their energy. Such neutrons are very promising for fundamental research and condensed matter studies. However, progress in this field is limited by the relatively small fraction of low-energy neutrons in the total flux and the low efficiency of their delivery to research facilities. Once the wavelength of neutrons reaches the interatomic distance, they begin to interact less efficiently with homogeneous media, pass through reflectors, and are not delivered to the facilities. The use of nanodispersed media, consisting of particles a few nanometers in size, solves this problem. Cold (CN) and very cold neutrons (VCN) are reflected from such materials due to intense coherent elastic scattering on an ensemble of nuclei, the individual nanoparticles.

Unique nanostructured reflectors of CN and VCN based on nanodiamonds, which have no effective analogs in the world, are being developed in the JINR FLNP. The efficiency of reflections of CN and VCN from nanodiamond powders is due, first of all, to the optimal sizes of individual nanoparticles (about 5 nm), as well as to the high density of diamond (3.5 g/cm3), a large cross section of coherent neutron scattering by carbon nuclei, and small neutron losses in the powder. The average sizes of nanodiamonds ~5 nm are optimal for VCN diffuse reflection at any angles of incidence on the reflector. Also, it is close to the optimum for quasi-specular reflection of CN at small sliding angles[[1]](#footnote-1). The phenomenon of quasi-specular reflection of CN from nanopowders can be applied to the focusing or transportation of CN to research facilities. The point is that other effective reflectors, such as supermirrors, unlike nanodiamond powders, are not radiation-resistant and are destroyed in intense fields of ionizing radiation.

However, applications of such nanostructured reflectors and further optimization of their properties require a detailed study of the structure and elemental composition of nanodiamond powders. As well as the development of adequate models of both the nanopowders themselves and the propagation of slow neutrons in them. The JINR FLNP has been engaged in these studies for the last 20 years, and its results will be presented in the report.

The main disadvantage of nanodiamond powders made by detonation synthesis is the high concentration of hydrogen in their composition (~10 at. %). Hydrogen in nanopowders has a rather significant capture cross section (0.3 barns) and a huge inelastic neutron scattering cross section (~100 barns)[[2]](#footnote-2). The chemical substitution of hydrogen for fluorine helped to get rid of the mentioned channels of low-energy neutron losses[[3]](#footnote-3). In addition, studies on the effect of fluorination on the structure of nanodiamond powders and their scattering properties confirmed that fluorination of nanodiamond powders does not affect the size and structure of the diamond core of nanoparticles but removes the graphite-like shell from them. The amount of hydrogen, the main source of neutron losses, decreases by ~30 times, increasing the reflectivity of nanodiamonds.

Nanodiamond powders made by detonation synthesis are almost ideally suited for the role of the CN and VCN reflector materials. But there are a number of problems, and solutions will improve them. Real nanodiamond powders contain nanoparticles and clusters of different sizes, which affect their reflectivity. In addition, nanopowders contain numerous impurities other than hydrogen. Unlike carbon, these impurities are more active in capturing neutrons and are activated in intense radiation fields, which negatively affects the reflector properties. Nanodiamond powders were studied by methods of prompt gamma-ray neutron activation analysis[[4]](#footnote-4), X-ray fluorescence, and instrumental neutron activation analysis. The samples corresponded to different technologies of purification from impurities of metals and elements with a large neutron capture cross-section, as well as technologies of powder modification such as deagglomeration (the destruction of clusters) and separation of nanodiamonds by size.

Structural studies of nanodiamonds have shown that breaking clusters into individual nanoparticles increases the neutron reflection probability both by effectively increasing the number of smaller scatterers and by significantly increasing the density of the nanopowder[[5]](#footnote-5). Another valuable result is the demonstration of enhanced reflection of a narrower spectrum of VCNs by using nanoparticles of specific sizes[[6]](#footnote-6). For example, nanodiamonds with an average size of 4.3 nm more effectively reflect neutrons with velocities up to ~50 m/s, while those with a size of 3.0 nm reflect neutrons at ~50 m/s or more, thus extending the range of possible applications of VCN reflectors made of nanoparticles. Similar conclusions are also true for quasi-specular reflection of neutrons, but in this case, larger nanodiamonds of about 15 nm reflect CN more effectively than nanodiamonds of 4 nm[[7]](#footnote-7).

The intermediate result of the research was the first demonstration of directed extraction of VCN using a reflector made of fluorinated nanodiamond powder[[8]](#footnote-8). The role of a VCN source was played by a neutron beam, which fell inside a nanodiamond reflector in the form of a hollow cylinder, closed on one side by a plug made of the same nanodiamonds. As a result of multiple reflections from the inner walls of the cylinder, the VCNs had an increased probability of leaving the reflector through the open end. The gain in the flux density of VCNs extracted at all angles exceeded 30 times, and those extracted at small angles to the reflector axis (luminosity on the sample) exceeded about 10 times. Such a gain in the intensity of the VCN beam extracted directionally is equivalent to a tenfold increase in the power of a nuclear research reactor.

Original models of both the structure of nanodiamond powders and neutron transport in them were also proposed at the FLNP JINR. The implementation of these models in the form of unique simulation programs makes it possible to accurately calculate albedo, the most important characteristic of any reflector. For this purpose, instead of developing an experimental setup using tens of kilograms of nanopowder, only a single measurement of a nanodiamond sample with a mass of less than 1 g via a standard SANS facility is required.

In practice, these results can be used to create an intense source of low-energy neutrons. Its development will contribute to the advancement of neutron scattering techniques in applied research, for example, in the study of condensed media and advanced fundamental research in nuclear physics: neutron lifetime measurements, search for neutron-antineutron oscillations, neutron-mirror neutron, and others.[[9]](#footnote-9)

**Study of the properties and applications of nanodiamond reflectors of low-energy neutrons**

Alexander Nezvanov

На данный момент многие нейтронные исследовательские центры во всем мире нацелены на увеличение диапазона полезных нейтронов в сторону понижения их энергии. Такие нейтроны очень перспективны для фундаментальных исследований и изучения конденсированных сред. Однако прогресс в этой области ограничен сравнительно малой долей нейтронов низких энергий в общем потоке и низкой эффективностью их доставки к исследовательским установкам. Как только длина волны нейтронов достигает межатомного расстояния, они начинают менее эффективно взаимодействовать с гомогенными средами, проходят сквозь отражатели и не доставляются к установкам. Применение нанодисперсных сред, состоящих из частиц размером несколько нанометров, решает данную проблему. Холодные (ХН) и очень холодные нейтроны (ОХН) отражаются от таких материалов за счет интенсивного когерентного упругого рассеяния на ансамбле ядер – отдельных наночастицах.

В ЛНФ ОИЯИ разрабатываются уникальные наноструктурированные отражатели ХН и ОХН на основе наноалмазов, не имеющие эффективных аналогов в мире. Эффективность отражения ХН и ОХН от наноалмазных порошков обусловлено, в первую очередь, оптимальными размерами отдельных наночастиц (около 5 нм), а также высокой плотностью алмаза (3,5 г/см3), большим сечением когерентного рассеяния нейтронов ядрами углерода и малыми потерями нейтронов в порошке. Средние размеры наноалмазов ~5 нм оптимальны для диффузного отражения ОХН при любых углах падения на отражатель и близко к оптимуму для почти зеркального отражения ХН при малых скользящих углах[[10]](#footnote-10). Явление квази-зеркального отражения ХН от нанопорошков можно применять для фокусировки или транспортировки ХН к исследовательским установкам. Дело в том, что другие эффективные отражатели – суперзеркала, в отличие от наноалмазных порошков, не являются радиационно-стойкими и разрушаются в интенсивных полях ионизирующего излучения.

Однако для применений таких наноструктурированных отражателей и дальнейшей оптимизации их свойств требуется детальное изучение структуры и элементного состава порошков наноалмазов, а также разработка адекватных моделей как самих нанопорошков, так и распространения в них медленных нейтронов. В ЛНФ ОИЯИ занимаются этими исследованиями в течение последних 20 лет, а их результаты будут представлены в докладе.

Основным недостатком порошков наноалмазов детонационного синтеза является высокая концентрация водорода в их составе (~10 ат. %). Водород в нанопорошках обладает достаточно значительным сечением захвата (0,3 барн) и огромным сечением неупругого рассеяния нейтронов (~100 барн)[[11]](#footnote-11). Химическое замещение водорода на фтор помогло избавиться от указанных каналов потерь нейтронов низких энергий[[12]](#footnote-12). Кроме того, исследования по изучению влияния фторирования на структуру наноалмазных порошков и их рассеивающие свойства подтвердили, что фторирование наноалмазных порошков не влияет на размер и структуру алмазного ядра наночастиц, но удаляет с них графитообразную оболочку. Количество водорода, основного источника потерь нейтронов, уменьшается в ~30 раз, увеличивая отражающую способность наноалмазов.

Порошки наноалмазов детонационного синтеза почти идеально подходят на роль материала отражателей ХН и ОХН, но есть ряд проблем, решение которых позволит его улучшить. Реальные порошки наноалмазов содержат наночастицы и кластеры разных размеров, что влияет на их отражательную способность. Кроме этого, в нанопорошках содержится большое количество примесей помимо водорода. В отличие от углерода, эти примеси активнее захватывают нейтроны и активируются в интенсивных радиационных полях, что негативно влияет на свойства отражателя. Методами анализа мгновенных гамма-квантов[[13]](#footnote-13), рентгенофлуоресцентного и нейтрон-активационного анализа были исследованы образцы наноалмазов, соответствующие разным технологиям очистки от примесей металлов и элементов с большим сечением захвата нейтронов, а также технологиям модификации порошков: деагломерации (разрушение кластеров) и сепарации наноалмазов по размерам.

Структурные исследования наноалмазов показали, что разрушение кластеров на отдельные наночастицы увеличивает вероятность отражения нейтронов как за счет эффективного увеличения количества рассеивателей меньшего размера, так и за счет значительного увеличения плотности нанопорошка[[14]](#footnote-14). Другой ценный результат – демонстрация усиления отражения более узкого спектра ОХН за счет использования наночастиц определенных размеров[[15]](#footnote-15). Так, наноалмазы со средним размером 4,3 нм более эффективно отражают нейтроны со скоростью до ~50 м/с, а с размером 3,0 нм – от ~50 м/c и более, что расширяет область возможных применений наночастичных отражателей ОХН. Подобные выводы справедливы и для квази-зеркального отражения нейтронов, только в данном случае более крупные наноалмазы около 15 нм отражают ХН эффективнее чем наноалмазы 4 нм [[16]](#footnote-16).

Промежуточным итогом исследований стала первая демонстрация направленного извлечения ОХН с помощью отражателя из порошка фторированных наноалмазов[[17]](#footnote-17). Источником ОХН выступал пучок нейтронов, который попадал внутрь наноалмазного отражателя в форме полого цилиндра, закрытого с одной стороны пробкой из тех же наноалмазов. В результате многократного отражения от внутренних стенок цилиндра ОХН имели повышенную вероятность покинуть отражатель через открытый конец. Увеличение плотности потока ОХН, извлеченных под любыми углами, превысило 30 раз, а извлеченных направленно под малыми углами к оси отражателя (светимость на образце) – около 10 раз. Такой выигрыш в интенсивности пучка ОХН, извлекаемых направленным образом на образец, эквивалентен десятикратному увеличению мощности исследовательского ядерного реактора.

В ЛНФ ОИЯИ также были предложены оригинальные модели как самой структуры порошков наноалмазов, так и транспорта нейтронов в них. Реализация этих моделей в виде уникальных расчетных программ позволяет точно рассчитать важнейшую характеристику любого отражателя – альбедо. Для этого вместо создания экспериментальной установки с использованием десятков килограмм нанопорошка требуется лишь однократное исследование свойств на стандартной установке малоуглогово рассеяния нейтронов наноалмазного образца массой менее 1 г.

На практике указанные результаты могут быть использованы для создания интенсивного источника нейтронов низких энергий. Его создание будет способствовать развитию техник нейтронного рассеяния в прикладных исследованиях, например при изучении конденсированных сред, и передовых фундаментальных исследований в области ядерной физики: измерения времени жизни нейтрона, поиск осцилляций нейтрон-антинейтрон, нейтрон-зеркальный нейтрон и др.[[18]](#footnote-18)

1. Nesvizhevsky V.V. et al. Phys. Rev. A. 97 (2018). DOI: [10.1103/PhysRevA.97.023629](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.023629) [↑](#footnote-ref-1)
2. Krylov A.R. et al. Crystallogr. Rep. 56 (2011). DOI: [10.1134/S1063774511070169](https://doi.org/10.1134/S1063774511070169) [↑](#footnote-ref-2)
3. Bosak A. et al. Materials. 13 (2020). DOI: [10.3390/ma13153337](https://doi.org/10.3390/ma13153337) [↑](#footnote-ref-3)
4. Hramco C. et al. Nucl. Eng. Technol. 54 (2022). DOI: [10.1016/j.net.2022.02.022](https://doi.org/10.1016/j.net.2022.02.022) [↑](#footnote-ref-4)
5. Aleksenskii A. et al. Nanomaterials. 11 (2021). DOI: [10.3390/nano11081945](https://doi.org/10.3390/nano11081945) [↑](#footnote-ref-5)
6. Aleksenskii A. et al. Nanomaterials. 11 (2021). DOI: [10.3390/nano11113067](https://doi.org/10.3390/nano11113067) [↑](#footnote-ref-6)
7. Bosak A. et al. Materials. 16 (2023). DOI: [10.3390/ma16020703](https://doi.org/10.3390/ma16020703) [↑](#footnote-ref-7)
8. Chernyavsky S.M. et al. Rev. Sci. Instrum. 93 (2022). DOI: [10.1063/5.0124833](https://doi.org/10.1063/5.0124833) [↑](#footnote-ref-8)
9. Abele H. et al. Phys. Rep. 1023 (2023). DOI: [10.1016/j.physrep.2023.06.001](https://doi.org/10.1016/j.physrep.2023.06.001) [↑](#footnote-ref-9)
10. Nesvizhevsky V.V. et al. Phys. Rev. A. 97 (2018). DOI: [10.1103/PhysRevA.97.023629](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.023629) [↑](#footnote-ref-10)
11. Krylov A.R. et al. Crystallogr. Rep. 56 (2011). DOI: [10.1134/S1063774511070169](https://doi.org/10.1134/S1063774511070169) [↑](#footnote-ref-11)
12. Bosak A. et al. Materials. 13 (2020). DOI: [10.3390/ma13153337](https://doi.org/10.3390/ma13153337) [↑](#footnote-ref-12)
13. Hramco C. et al. Nucl. Eng. Technol. 54 (2022). DOI: [10.1016/j.net.2022.02.022](https://doi.org/10.1016/j.net.2022.02.022) [↑](#footnote-ref-13)
14. Aleksenskii A. et al. Nanomaterials. 11 (2021). DOI: [10.3390/nano11081945](https://doi.org/10.3390/nano11081945) [↑](#footnote-ref-14)
15. Aleksenskii A. et al. Nanomaterials. 11 (2021). DOI: [10.3390/nano11113067](https://doi.org/10.3390/nano11113067) [↑](#footnote-ref-15)
16. Bosak A. et al. Materials. 16 (2023). DOI: [10.3390/ma16020703](https://doi.org/10.3390/ma16020703) [↑](#footnote-ref-16)
17. Chernyavsky S.M. et al. Rev. Sci. Instrum. 93 (2022). DOI: [10.1063/5.0124833](https://doi.org/10.1063/5.0124833) [↑](#footnote-ref-17)
18. Abele H. et al. Phys. Rep. 1023 (2023). DOI: [10.1016/j.physrep.2023.06.001](https://doi.org/10.1016/j.physrep.2023.06.001) [↑](#footnote-ref-18)