

СТРУКТУРНАЯ НЕЙТРОНОГРАФИЯ В ЛНФ ОИЯИ

А.М.Балагуров

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

В обзоре рассмотрено развитие структурной нейтронографии на импульсных источниках Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ в период с 1963 по 1995 гг. Непосредственное отношение к начальному этапу развития нейтронографии в ЛНФ имел Ф.Л.Шапиро, под руководством которого были выполнены первые экспериментальные работы. Рассмотрена специфика нейтронографии на импульсных источниках нейтронов, хронология основных моментов становления нейтронографии в ЛНФ и ее состояние в 90-е годы на реакторе ИБР-2.

The development of neutron diffraction studies in Frank Laboratory of Neutron Physics in the period from 1963 to 1995 is described. F.L.Shapiro was one of the people who had the direct relation to that development. Under his leadership the first experiments were performed. The special features of diffraction at pulsed neutron sources are discussed as well as the principal points of diffraction studies development in FLNP and the current status of neutron diffraction at the IBR-2 pulsed reactor.

Под структурной нейтронографией понимают обычно применение метода дифракции тепловых нейтронов для восстановления структуры объекта (кристалла) с точностью, достаточной для локализации отдельных атомов, и изучения структурных перестроек под действием внешних условий. В более широком смысле в нее же входят исследования малоуглового рассеяния нейтронов, в которых разрешение ограничено на уровне отдельных атомных группировок ($\sim 10 \text{ \AA}$), исследования прикладного характера, например, изучение текстуры и внутренних напряжений в объемных изделиях, и некоторые другие. Настоящий обзор посвящен развитию структурной нейтронографии (в ее традиционном понимании) на импульсных источниках Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ; непосредственное отношение к началу этих работ имел Ф.Л.Шапиро.

1. DA- И TOF-ДИФРАКТОМЕТРЫ

Известно, что нейтронные дифрактометры на стационарных реакторах фактически копируют схему рентгеновского дифрактометра: монохроматор посылает на образец узкую ($\Delta\lambda/\lambda \approx 0,01$) линию, развертка дифракционного спектра ведется по углу рассеяния. Она осуществляется либо сканированием углового интервала одиночным детектором, либо многосчетчиковой или позиционно-чувствительной детекторной системой. Нейтронные дифрактометры такого типа стали называть двухосными или DA-дифрактометрами (от «Double Axes»), подразумевая возможность вращения монохроматора и детектора вокруг двух вертикальных осей.

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»).

По-видимому, впервые идея использования метода времени пролета для изучения дифракции нейтронов была высказана Эгелстафом в 1954 г. [1]. Теоретическое обоснование нейтронографии с использованием широкого спектра нейтронов было дано в работе Лауда в 1956 г. [2], но только в 1963—1964 гг. были выполнены первые эксперименты с использованием этого метода на стационарном реакторе с применением прерывателя [3] в Сверке (Польша) и на импульсном реакторе ИБР-1 в Дубне [4]. Вплоть до 1970 г. теоретическое и практическое развитие метода велось в основном в Дубне группой российских и польских физиков (В.В.Нитц, Т.А.Мачехина, И.Сосновска, Е.Сосновски, Е.Лециевич, А.Холас и др.) под руководством Ф.Л.Шапира и Б.Бураса.

2. 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 некоторым фиксированным направлением регистрируются детектором. Устройство анализа записывает в оперативную память спектр с разверткой по времени пролета нейтронов от за-

медлителя до детектора. Спектры от последовательных импульсов источника суммируются для накопления необходимой статистики.

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/см²/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 $0,9 + 8 \text{ \AA}$, хотя реально используются как очень малые, до $0,5 \text{ \AA}$, так и очень большие, вплоть до 20 \AA , длины волн. Это позволяет с помощью небольшого числа детекторов перекрыть широкий диапазон по межплоскостным расстояниям. Действительно, всего два детектора, поставленные на углах рассеяния 20° и 160° , при работе в диапазоне $0,9 \leq \lambda \leq 8 \text{ \AA}$ в соответствии с уравнением Брэгга—Вульфа $d = \lambda / (2 \sin \theta)$ дают возможность наблюдать интервал d_{hkl} от $0,46$ до 23 \AA .

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.

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.

Существенным недостатком TOF-дифрактометра является меньшая, чем в обычном случае, прецизионность получаемых данных. Это связано с необходимостью вводить большое число зависящих от длины волны поправок при переводе измеренных интенсивностей дифракционных пиков в структурные факторы. Наиболее важная из них — эффективный спектр падающих на образец нейтронов, включающий пропускание на пролетных базах и эффективность детектора. Эта поправка может различаться в десятки раз в зависимости от длины волны, методы ее определения пока нельзя признать безупречными, и именно она в основном определяет точность экспериментальных значений структурных факторов кристалла.

Уже в первых исследованиях, выполненных в ЛНФ, были подтверждены многие из предсказывавшихся достоинств ТОФ-дифрактометра и, прежде всего, большая скорость набора информации. В работах Ф.Л.Шапиро с соавторами [5,6] особо отмечался импульсный характер облучения образца пучком нейтронов. Последнее позволяет и внешнее воздействие на образец реализовать в импульсном режиме, за счет чего можно резко увеличить амплитуду этого воздействия и достичь величины поля, не достижимой в стационарном режиме. В зависимости от длительности импульса поля (магнитного или электрического) и условий синхронизации можно наблюдать его воздействие на весь спектр, на несколько дифракционных пиков или на один пик. Как весьма перспективное направление на импульсном источнике нейтронов, назывались исследования релаксационных процессов. В частности, в [6] отмечалось, что «в случае использования высокоинтенсивного импульсного источника нейтронов можно надеяться получить полную нейтронограмму за несколько минут».

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

3. ХРОНОЛОГИЯ ОСНОВНЫХ ЭТАПОВ РАЗВИТИЯ НЕЙТРОНОГРАФИИ В ЛНФ

Итак, в 1963—1964 гг. на ИБР-1 были проведены первые методические эксперименты, в которых с использованием метода времени пролета измерены дифракционные спектры от поликристаллических образцов (рис.1).

В 1965 г. был выполнен первый физический эксперимент [7]: дифракция нейтронов использовалась для определения ориентации магнитных моментов ионов железа в соединении ViFeO_3 относительно кристаллографических осей. Эксперимент завершился успешно только благодаря важной особенности ТОФ-дифрактометра — улучшению разрешения при увеличении d_{hkl} .

В 1966—1967 гг. был сделан серьезный методический шаг. Практически одновременно в Дубне (А.Холас) и Аргоне (Дж.Карпентер) был предложен [8,9], а в Дубне и практически проверен [10] метод временной фокусировки, позволивший существенно увеличить светосилу ТОФ-дифрактометров без ухудшения разрешающей способности.

В 1968 г. начаты дифракционные эксперименты при воздействии на образец сильного импульсного магнитного поля [11].

В 1967 г. были предложены [12], а в 1968—1970 гг. реализованы [13,14] дифракционные эксперименты, целью которых было определение амплитуды взаимодействия нейтрона с электроном, связанной с неравным

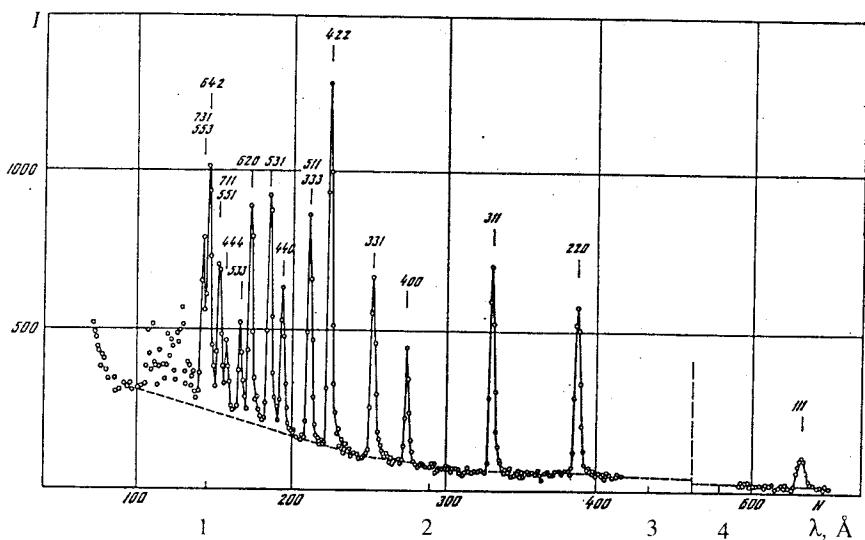


Рис.1

нулю среднеквадратичным зарядовым радиусом нейтрона. Эти эксперименты являются примером применения дифракции медленных нейтронов для измерения ядерно-физических констант (когерентные длины рассеяния нейтронов на элементах и изотопах) и констант, напрямую связанных с кварковой структурой нуклонов.

В конце 60-х годов в ЛНФ, в связи с началом проектирования нового мощного импульсного реактора ИБР-2, И.М.Франк и Ф.Л.Шапиро инициировали формирование программы исследований по физике конденсированных сред, важное место в которой заняла дифракция нейтронов. Предполагалось, что прежде всего усилия должны быть направлены на решение одной из наиболее сложных задач структурного анализа — определение структуры биологических макромолекул. Для проработки этой проблемы и развития методики структурного анализа с использованием ТОФ-дифрактометра в созданном в 1972 г. отделе физики конденсированных сред (Ю.М.Останевич) была организована группа структурной нейтронографии.

В 1974 г. этой группой был завершен первый тестовый количественный эксперимент на монокристалле $C_{10}D_8$ [15], а в 1975 г. выполнен эксперимент по уточнению позиций атомов дейтерия в структуре монокристалла $La_2Mg_3(NO_3)_{12} \cdot 24D_2O$ [16].

В 1977 г. в сотрудничестве с Институтом кристаллографии (Москва) (лаборатория Л.А.Шувалова) были начаты дифракционные исследования [17] доменной структуры сегнетоэлектриков и сегнетоэластиков, которые привели впоследствии к развитию многомерной дифрактометрии нейтронов: сначала двумерной, основанной на применении однокоординатного позиционно-чувствительного детектора [18], а затем трехмерной с помощью двухкоординатного ПЧД [19].

К 1982 г. большинство нейтронных спектрометров с ИБР-30 были перенесены на ИБР-2, и начаты первые эксперименты на многоцелевом дифрактометре ДН-2. Несколько позже были введены в эксплуатацию дифрактометр с импульсным магнитным полем СНИМ, текстурный дифрактометр НСВР и дифрактометр для исследования идеальных кристаллов ДИФРАН. Существенно больший, чем на ИБР-30, поток нейтронов, улучшенная организация пучков и современные электронные средства управления экспериментом обеспечили качественно новые возможности для структурной нейтронографии, что привело к заметному обновлению тематики исследований.

В 1983 г. на ДН-2 были проведены первые эксперименты с биообъектами: монокристаллом глобулярного белка миоглобина и мультислойми липидных мембран, нанесенных на стеклянные подложки, что и было стартом предполагавшейся обширной биологической программы. В этих экспериментах была подтверждена принципиальная возможность исследования структуры биологических объектов на ИБР-2. Было выяснено, однако, что доступные в то время размеры монокристаллов белков малы для полноценного структурного эксперимента, и, наоборот, мультислойные структуры могут изучаться весьма эффективно [20,21]. Второй успешной линией намечавшейся биологической программы стали исследования структуры рибосом и мицеллярных растворов на спектрометре малоуглового рассеяния [22].

С 1985 г. начались систематические эксперименты по изучению необратимых переходных процессов в конденсированных средах методом нейтронографии в реальном времени [23,24]. Достигнутая на дифрактометре ДН-2 высокая интенсивность нейтронного пучка позволила с успехом изучать переходные процессы с характерными временами порядка нескольких минут [25].

В 1989 г. было принято решение о создании на ИБР-2 фурье-дифрактометра высокого разрешения (ФДВР) [26], предназначенного для прецизионных структурных исследований поликристаллических материалов. Работа велась в коллаборации с ПИЯФ (Гатчина, лаборатория В.А.Трунова) и Центром технических исследований Финляндии (лаборатория П.Хиисмяки), и в 1992 г. первые дифракционные спектры высокого ($\Delta d/d \approx 0,0013$) разрешения были зарегистрированы [27].

В 1992 г. по предложению В.А.Соменкова (РНЦ «Курчатовский институт») на ИБР-2 было начато и к концу 1993 г. завершено создание первой очереди специализированного дифрактометра ДН-12 для структурных исследований при высоких (до ~20 ГПа) давлений [28].

4. СТРУКТУРНАЯ НЕЙТРОНОГРАФИЯ НА ИБР-2 В 90-Х ГОДАХ

Многочисленные и разнообразные нейтронографические исследования, ведущиеся в настоящее время на ИБР-2, можно разбить на четыре группы экспериментов, проведение которых требует специфической организации дифрактометра, а именно: эксперименты, выполняемые на монокристаллах, структурные эксперименты, выполняемые на поликристаллах, исследования переходных процессов в кристаллических материалах, эксперименты с микрообразцами, в основном при высоких давлениях.

Современные требования к ТОФ-дифрактометрам, на которых ведутся такого рода исследования, состоят в следующем (в том же порядке перечисления): наличие двухкоординатного ПЧД с хорошим ~0,3 см пространственным разрешением, высокая светосила и высокое (на уровне 0,001) разрешение по $\Delta d/d$, очень высокая светосила и очень широкий диапазон по d_{hkr} , очень высокая светосила при соблюдении очень высокого отношения эффекта к фону.

Существующие на ИБР-2 ТОФ-дифрактометры — ДН-2, ФДВР и ДН-12 — позволяют проводить структурные эксперименты на высоком современном, а для некоторых их типов на лучшем в мире уровне.

4.1. Исследования монокристаллов. Выше отмечалось, что прецизионность получаемых на ТОФ-дифрактометре структурных данных несколько хуже, чем та, которая может быть достигнута на ДА-дифрактометре из-за необходимости введения сильно зависящих от длины волны нейтрона поправок. Поэтому основной упор в исследованиях монокристаллов на ТОФ-дифрактометрах делается на эксперименты, в которых реализуется основное их достоинство — возможность одновременного наблюдения большого объема обратного пространства при фиксированной геометрии.

На дифрактометре ДН-2 для этого уже много лет используется линейный ПЧД, с помощью которого выполнено большое число отдельных экспериментов и несколько крупных циклов исследований. В первом из них, начатом еще на ИБР-30, изучались доменные структуры сегнетоэлектрических (KD_2PO_4 , $LiKSO_4$) и сегнетоэластических ($KD_3(SeO_3)_2$, K_2ZnCl_4) кристаллов и их поведение при внешних воздействиях. На рис.2 показан пример измеренного распределения интенсивности в одном из узлов обрат-

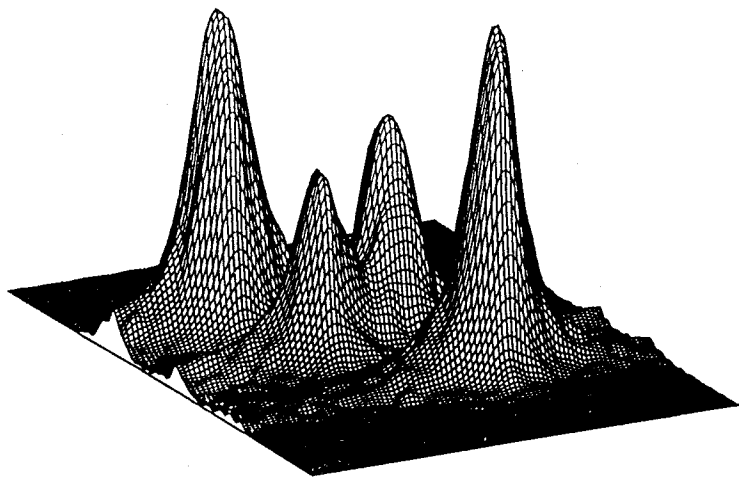


Рис.2

ной решетки кристалла KD_2PO_4 , находящегося в сегнетоэлектрической (и одновременно сегнетоэластической) фазе.

Еще одним примером исследований, в которых необходимо непрерывное сканирование обратного пространства, являются работы по изучению несоизмерной модуляции структуры (атомной или магнитной) и переходов между соразмерной и несоизмерной фазами кристалла. Эксперименты проводились с диэлектрическими кристаллами $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Nb}_2\text{O}_6$ [30], с магнитными гексаферритами $\text{Ba}(\text{Ti}, \text{CO})_2\text{Fe}_8\text{O}_{19}$ [31] и с кристаллами ВТСП типа Bi-2212 [32].

Несколько необычное применение метод непрерывного сканирования нашел при изучении теплового диффузного рассеяния на ТОФ-дифрактометре [33].

4.2. Исследования поликристаллов с высоким разрешением. Уникальность реактора ИБР-2 как источника нейтронов проявляется прежде всего в его рекордном в мире импульсном потоке тепловых нейтронов. В то же время считалось, что эксперименты, требующие хорошего разрешения по энергии или по длине волны нейтрона, практически невозможны на ИБР-2 из-за большой ширины импульса быстрых нейтронов. Уменьшить временную компоненту функции разрешения можно, или увеличивая пролетную базу, или сокращая каким-либо способом ширину импульса. По первому пути пошли создатели спектрометра НСВР на ИБР-2 — пролетное расстояние около 100 м позволило получить $\Delta d/d \approx 0,004$, что достаточно для тек-

стурных экспериментов, ведущихся на НСВР. Хотелось, однако, достичь уровня $\sim 0,001$, который позволяет проводить прецизионные исследования структуры поликристаллов. Это оказалось возможным с помощью техники корреляционного анализа, с использованием быстрого фурье-прерывателя. В этом методе эффективная ширина нейтронного импульса обратно пропорциональна максимальной частоте модуляции интенсивности нейтронного пучка и может быть доведена до ~ 7 мкс. При этом уже на пролетной базе 20 м можно достичь (в принципе) величины $\Delta d/d \approx 0,0005$. Благодаря короткой пролетной базе и высокому пропусканию фурье-прерывателя светосила этого метода существенно превышает светосилу любых других вариантов достижения столь высокого разрешения. Основной недостаток обычного фурье-метода — высокий уровень корреляционного фона — в случае его использования на импульсном источнике нейтронов оказывается в значительной степени подавленным за счет дополнительного стробирования по времени [27]. Создание в 1992 г. макетного варианта дифрактометра ФДВР подтвердило все идеи метода, в частности, сразу же был достигнут уровень разрешения, близкий к 0,001. После введения в строй в конце 1994 г. основных узлов дифрактометра на нем начались регулярные физические эксперименты. Эффект достигнутого разрешения показан на рис.3, где сравниваются дифракционные спектры $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.7}\text{Fe}_{0.3}\text{O}_7$, измеренные на ФДВР в обычном режиме (внизу) и с использованием фурье-метода (вверху).

Видно, что качество дифракционных данных и, соответственно, извлекаемой структурной информации удалось улучшить радикально. В настоящее время на ФДВР ведутся прецизионные структурные эксперименты [34] и исследования внутренних напряжений в объемных изделиях и композитных материалах [35].

4.3. 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 $t_s \ll \tau$, где τ — 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 5—15 мин. На некоторых импульсных источниках нейтронов (ISIS, LANSCE) достигнуты примерно такие же времена. На реакторе ИБР-2 на дифрактометре ДН-2

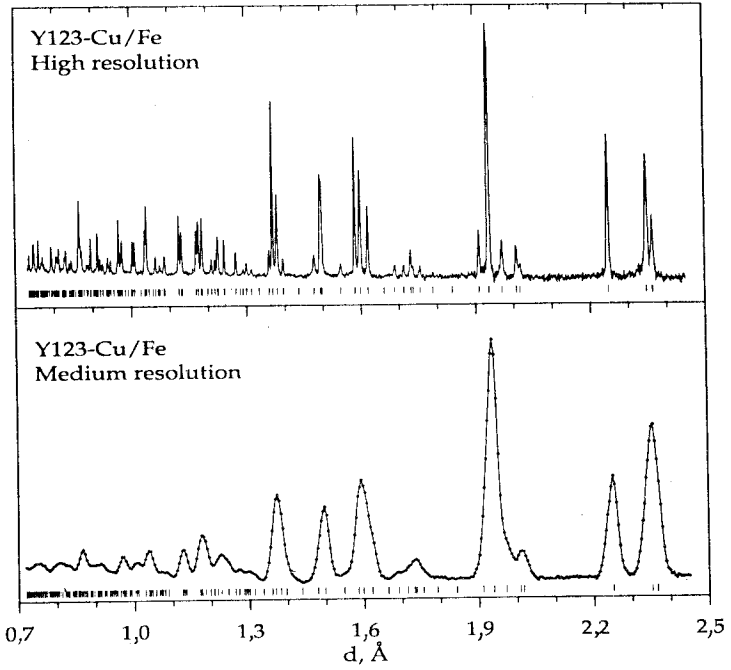


Рис.3

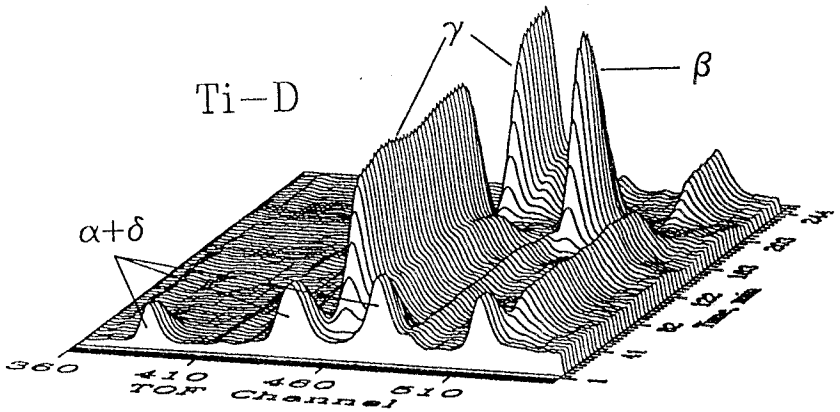


Рис.4

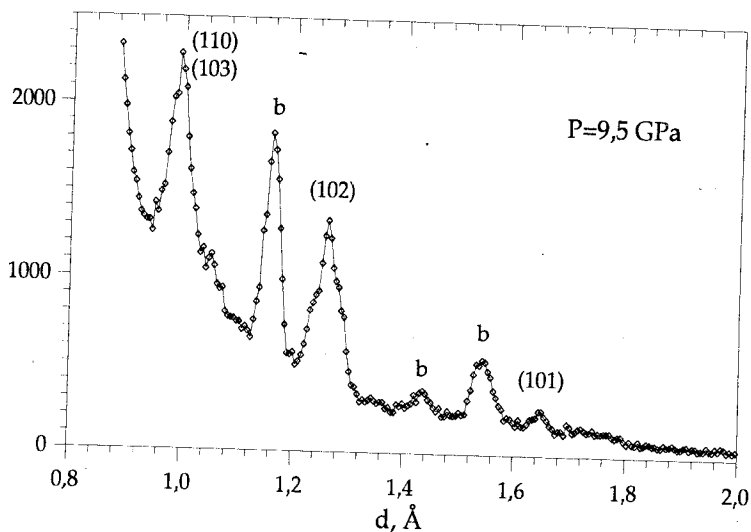


Рис.5

имеются возможности для анализа необратимых процессов в кристаллах с временным разрешением ~ 1 мин, отдельные эксперименты были выполнены с разрешением 20 с и даже 2 с [36]. Пример эволюции дифракционных спектров в ходе фазовых переходов в системе $\text{TiD}_{0,73}$ показан на рис.4. Последующий анализ совокупности спектров методом Ритвельда позволил определить зависимости от времени (т.е. от температуры) всех структурных характеристик системы [37]. В последние несколько лет с помощью этого метода на дифрактометре ДН-2 изучались самые разнообразные процессы: реакция гидратации цемента [23], реакция синтеза соединения Y123 [38], аморфизация соединения Y123 под действием нагревания в водородной среде [39], фазовые переходы в тяжелом льде [40], в шпинели $\text{CuLi}_{0,1}\text{V}_{0,1}\text{Fe}_{1,8}\text{O}_4$ [41] и многие другие.

4.4. 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 связано с использованием относительно больших объемов образца ($\sim 1 \text{ см}^3$) в ячейках давления типа поршень — цилиндр. Применение для достижения больших давлений наковален казалось совершенно невозможным из-за малых (10^{-1} – 10^{-3} мм^3) объемов вещества и относительной слабости потоков от нейтронных источников. Однако

на протяжении последнего десятилетия был развит метод нейтронных исследований при высоких давлениях, основанный на сочетании техники алмазных и сапфировых наковален и светосильной низкофоновой нейтронной дифрактометрии, позволившей расширить диапазон давлений в этих экспериментах до нескольких десятков ГПа [42]. Опыт постановки таких экспериментов в РНЦ КИ был перенесен на ИБР-2, и в 1994 г. на дифрактометре ДН-12 были проведены первые эксперименты. Тщательная проводка нейтронного пучка, оригинальная конструкция детекторной системы позволили даже на сравнительно слабоинтенсивном канале реактора получить результаты, близкие к рекордным в мире по минимальному объему образца и уровню достижимых давлений [28]. На рис.5 показан один из измеренных дифракционных спектров от образца $^{164}\text{DyD}_3$ в алмазных наковальнях, объем которого составлял всего $0,027 \text{ мм}^3$, измеренный на ДН-12 за 24 часа [28]. За короткий срок на ДН-12 была выполнена серия интересных экспериментов, в частности, со сверхпроводником $\text{HgBa}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{6+\delta}$ [43], с молекулярным кристаллом NH_4Cl [44] и др.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

За последние годы нейтронография в ЛНФ прошла впечатляющий путь развития, начало которому было положено в 60-х годах в работах Ф.Л.Шапиро и его учеников. Ближайшие ее перспективы связаны прежде всего с улучшением уже существующей техники. В 1995 г. на ДН-2 начались испытания двухкоординатного ПЧД с разрешением 0,3 см, который позволит существенно продвинуться вперед в организации экспериментов с монокристаллами. На ФДВР будут введены в строй несколько дополнительных детекторов с большим телесным углом, что в несколько раз увеличит светосилу дифрактометра. На ДН-12 в 1996 г. будет установлен зеркальный нейтроновод для формирования теплового пучка нейтронов, однокольцевой детектор будет заменен на восьмикольцевой. Это позволит резко снизить уровень фона и увеличить светосилу.

Можно уверенно сказать, что созданный комплекс дифрактометров на реакторе ИБР-2, с последующим его развитием, является мощной экспериментальной базой, позволяющей решать практически любые задачи современной структурной нейтронографии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Egelstaff P.A. — III Congress of IUC, Paris, 1954.
2. Lowde R.D. — Acta Cryst., 1956, vol.9, p.151.
3. Buras B., Leciejewicz J. — Nucleonika, 1963, vol.8, p.75.

4. Нитц В.В., Папулова З.Г., Сосновска И., Сосновски Е. — ФТТ, 1965, т.6, с.1370.
5. Нитц В.В., Сосновска И., Сосновски Е., Шапиро Ф.Л. — Сообщение ОИЯИ, 2081, Дубна, 1965.
6. Buras V., Leciejewicz J., Sosnowska I., Sosnowski J., Shapiro F.L. — III Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy. 1964, Report A/Conf. 28/P/488.
7. Сосновска И., Сосновски Е., Киселев С.В., Озеров Р.П. — Сообщение ОИЯИ, 2653, Дубна, 1966.
8. Carpenter J.M. — Nucl. Instr. and Methods, 1967, vol.47, p.179.
9. Holas A. — Nukleonika, 1968, vol.8, p.871.
10. Holas A., Holas J., Maliszewski E., Sedlakova L. — JINR Communications, E14-3759, Дубна, 1968.
11. Анцупов П.С., Нитц В.В. и др. — Сообщение ОИЯИ, P14-4548, Дубна, 1969.
12. Александров Ю.А. — Сообщение ОИЯИ, 3-3442, Дубна, 1967.
13. Александров Ю.А., Балагуров А.М., Малишевски Э. и др. — Ядерная физика, 1969, т.10, с.328.
14. Aleksandrov Yu.A. — JINR Communications, E3-5713, Дубна, 1971.
15. Балагуров А.М., Борка Е., Длоуга М., Миронова Г.М. — Сообщение ОИЯИ, P3-9796, Дубна, 1976; Кристаллография, 1977, т.22, с.718.
16. Балагуров А.М., Борка Е., Длоуга М., Миронова Г.М. — Сообщение ОИЯИ, P14-10383, Дубна, 1977; Acta Cryst., 1977, vol.A35, p.131.
17. Балагуров А.М., Георгиу З., Датт И.Д. и др. — Сообщение ОИЯИ, P14-11811, Дубна, 1978; phys.st.sol. (a), 1979, vol.51, p.367.
18. Балагуров А.М., Горделий В.И., Ишмухаметов М.З. и др. — Сообщение ОИЯИ, P13-80-440, Дубна, 1980; Nucl. Instr. and Meth., 1982, vol.193, p.617.
19. Ананьев Б.Н., Балагуров А.М., Горделий В.И. и др. — Сообщение ОИЯИ, P13-81-857, Дубна, 1981.
20. Балагуров А.М., Горделий В.И., Ягужинский Л.С. — Краткие сообщения ОИЯИ, 1-84, 23, Дубна, 1984; Биофизика, 1986, т.31, с.31.
21. Балагуров А.М., Горделий В.И., Ягужинский Л.С. — Сообщение ОИЯИ, P14-84-862, Дубна, 1984; Биофизика, 1986, т.31, с.1004.
22. Останевич Ю.М. — Сообщение ОИЯИ, P13-87-407, Дубна, 1987/Macromol. Chem., Macromol. Symp., 1988, vol.15, p.91.
23. Балагуров А.М., Миронова Г.М. — Краткие сообщения ОИЯИ, 19-86, Дубна, 1986, с.50.
24. Балагуров А.М., Миронова Г.М. — VI Школа по нейтронной физике, ОИЯИ, ДЗ,14-91-154, Дубна, 1991, т.II, с.16.
25. Балагуров А.М., Миронова Г.М. — Кристаллография, 1991, т.36, с.314.
26. Аксенов В.Л., Антсон О., Балагуров А.М. и др. — Сообщение ОИЯИ, P3-91-172, Дубна, 1991.
27. Aksenov V.L., Balagurov A.M., Simkin V.G. et al. — ICANS-XII, RAL Report 94-025, vol.1, p.124, Abingdon, 1993.
28. Аксенов В.Л., Балагуров А.М., Платонов С.Л. и др. — Сообщение ОИЯИ, P3-95-14, Дубна, 1995.
29. Балагуров А.М., Датт И.Д., Савенко Б.Н., Шувалов Л.А. — ФТТ, 1980, т.22, с.2735.

30. Balagurov A.M., Prokert F., Savenko B.N. — *phys. st. sol. (a)*, 1987, vol.103, p.131.
31. Балагуров А.М., Бескровный А.И., Попа Н., Садыков Р.А. — Сообщение ОИЯИ, P14-85-726, Дубна, 1985.
32. Beskrovnyi A.I., Dlouha M., Jirak Z., Vratislav S., Pollert E. — *Physica C*, 1990, vol.166, p.79.
33. Prokert F., Savenko B.N., Balagurov A.M. — *Acta Cryst.*, 1995, vol.A51, p.124.
34. Balagurov A.M., Fischer P., Kaganovich T.Yu. et al. — *JINR Communications*, E14-94-415, Dubna, 1994.
35. Aksenov V.L., Balagurov A.M., Bokuchava G.D. et al. — *JINR Communications*, E14-95-37, Dubna, 1995.
36. Balagurov A.M., Mironova G.M., Novozhilov V.E. et al. — *J. Appl. Cryst.*, 1991, vol.24, p.1009.
37. Kolesnikov A.I., Balagurov A.M., Bashkin I.O. et al. — *J.Phys.: Condens.Matter*, 1993, vol.5, p.5045.
38. Балагуров А.М., Миронова Г.М. — *СФХТ*, 1990, т.3, с.545.
39. Balagurov A.M., Mironova G.M., Rudnickij L.A., Galkin V.Yu. — *Physica C*, 1990, vol.172, p.331.
40. Балагуров А.М., Баркалов О.И., Колесников А.И. и др. — *Письма в ЖЭТФ*, 1991, т.53, с.30.
41. Balagurov A.M., Kozlova E.P., Mironova G.M., Jacyna-Onyszkiewicz I. — *phys. st. sol. (a)*, 1993, vol.136, p.57.
42. Шильштейн С.Ш., Глазков В.П., Макаренко И.Н. и др. — *ФТТ*, 1983, т.25, с.3309.
43. Aksenov V.L., Antipov E.V., Balagurov A.M. et al. — *JINR Communications*, E14-94-467, Dubna, 1994.
44. Balagurov A.M., Borman A.V., Glazkov V.P. et al. — *JINR Communications*, E14-95-1, Dubna, 1995.