

С 342.Г

К-228

14/VIII-68

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P-2198



ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

Э.Н. Каржавина, А.Б. Попов, И.И. Шелонцев, Ю.С. Язвickий

ПОИСКИ ЗАВИСИМОСТИ
ДОППЛЕРОВСКОГО УШИРЕНИЯ
НЕЙТРОННЫХ РЕЗОНАНСОВ
ОТ ХИМИЧЕСКОЙ СВЯЗИ.
РЕЗОНАНС 405 ЭВ Ce^{85}

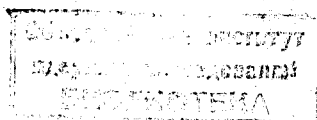
1965

P-2198

Э.Н. Каржавина, А.Б. Попов, И.И. Шелонцев, Ю.С. Язвяцкий

ПОИСКИ ЗАВИСИМОСТИ
ДОППЛЕРОВСКОГО УШИРЕНИЯ
НЕЙТРОННЫХ РЕЗОНАНСОВ
ОТ ХИМИЧЕСКОЙ СВЯЗИ.
РЕЗОНАНС $405 \text{ ЭВ } \text{Cs}^{135}$

Представлено на Международную конференцию
по изучению структуры ядра с помощью нейт-
ронов. Июль 1965 г., Антверпен.



При взаимодействии резонансных нейтронов с атомными ядрами наблюдается отступление формы резонанса от кривой Брейта-Вигнера вследствие допллер-эффекта, вызванного тепловым движением атомов образца. Это приводит к необходимости вводить поправки на допллер-эффект при определении параметров резонансов. В настоящее время хорошо разработаны методы учета таких поправок только для 2-х частных случаев: для образцов из идеального газа и для образцов из изотропных дебаевских кристаллов, состоящих из атомов одного сорта.

В случае газообразного образца эффект Доплера связан с поступательным перемещением атомов в пространстве. Количественная характеристика движения атомов в рассматриваемой задаче выражается т.н. допллеровской шириной^{1/}

$$\Delta = 2 \sqrt{\frac{m}{M} k T E_0},$$

где m и M — соответственно массы нейтронов и ядра, k — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура образца, E_0 — энергия резонанса.

В случае связанных атомов движение ядра в сильной степени определяется частотными свойствами атомной системы, поэтому теория допллер-эффекта для химических соединений должна учитывать структуру этих соединений. Вопрос о взаимодействии нейтронов с кристаллическими системами был рассмотрен в работе Лэмба^{2/}. В этой работе было показано, что случай изотропного кристалла, построенного из одинаковых атомов и обладающего дебаевским спектром частот, может быть сведен к газовой модели, если определить допллеровскую ширину выражением

$$\Delta = 2 \sqrt{\frac{m}{M} k T_{\text{эфф.}} E_0},$$

где $T_{\text{эфф.}} = 3 \left(\frac{T}{\Theta} \right)^2 T \int_0^{\Theta/T} \left(\frac{1}{e^4 - 1} + \frac{1}{2} \right) t^3 dt$

(Θ — температура по Дебаю),

и если выполняется условие

$$\Gamma + \Delta \gg 2 \Theta .$$

В приближении Лемба наиболее существенные для взаимодействия с нейтронами свойства системы, включающей изучаемое ядро, учитываются параметром $T_{\text{эфф}}$.

Кроме приближения идеального газа и лэмбовского приближения, в распоряжении экспериментаторов нет способов определения доплеровских поправок. Между тем в практике эксперимента приходится работать с соединениями, для которых не соблюдаются условия применимости указанных выше приближений. Неpravомерность использования приближения Лемба для рассмотрения формы резонансов металлов в случае образцов из окислов была показана в работах ^{/3/} и ^{/4/}. По-видимому, естественно поставить вопрос о том, может ли выбор вида соединения для образца практически повлиять на экспериментальные результаты тогда, когда параметры резонансов паходятся из анализа площадей резонансов. Имея в виду эту задачу, мы предприняли изучение поведения площадей резонанса ^{35}Cl .

Резонанс ^{35}Cl удобен для выяснения поставленного вопроса, так как для него следует ожидать, что $\frac{\Delta}{\Gamma} > 1$ (Γ - ширина резонанса), благодаря чему будут заметно проявляться особенности движения атомов ^{35}Cl в различных соединениях. Интерес к этому резонансу был вызван также отсутствием прямых измерений значений Γ и $g\Gamma_n$. В работах ^{/5-7/}, правда, были измерены полные эффективные сечения, сечения радиационного захвата и эффективные сечения реакций (n, p) для ^{35}Cl , однако значения Γ и $g\Gamma_n$ по этим данным не были определены.

Были проведены измерения пропускания трех соединений естественного хлора: CCl_4 , NaCl и PbCl_2 . Эти соединения были выбраны так, чтобы атомы хлора были связаны с сильно отличающимися по весу атомами других элементов. (Анализ чистоты образцов был проведен сотрудницей ЛНФ Л.А. Филимонычевой: NaCl - 99,83%; CCl_4 - 99,8%; PbCl_2 - 99,36%). Толщина образцов по ^{35}Cl была $2,075 \cdot 10^{22}$ $1/\text{см}^2$. Возможный разброс толщин образцов не превышал 0,5%. Указанное значение толщины находится в области максимума доплеровских поправок в функции толщины образца ^{/8/}.

Измерения пропускания проведены на нейтронном спектрометре Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ ^{/9/}, действующем на базе реактора ИБР ^{/10/} с помощью жидкостного детектора нейтронов ^{/11/}. Измерения велись на 1024-канальном временном анализаторе с шириной канала 8 мксек. Измерения с образцами чередовались с измерениями без образца. Набранное суммарное число отсчетов на канал в районе резонанса составляло около 30000 для каждого образца.

Для учета фона в пучке постоянно находился кобальтовый фильтр, дающий значение

фона при 130 эв. Пропускание с поправкой на просчеты анализатора и фон вычислялось на электронно-вычислительной машине. Правильность учета фона подтверждается тем, что перезонансные пропускания вблизи от резонанса, вычисленные по данным атласа BN L - 325, совпадают с экспериментальными для всех образцов.

По пропусканию вычислялась площадь резонанса, причем перезонансное пропускание в области резонанса находилось экстраполяцией данных о пропускании для большого числа каналов слева и справа от резонанса. (Заметим, что в рассматриваемой области перезонансная часть нейтронного сечения зависит от энергии).

На рис. 1 показано резонансное пропускание для трех исследованных образцов (снижение точек справа от резонанса вызвано присутствием Mn в формах образцов). Уже из рисунка видно, что пропускания для разных образцов почти не отличаются. Площади резонансов были вычислены без крыльев от E_1 до E_2 , так что

$$\epsilon_1 = |E_0 - E_1| = 10,9 \text{ эв},$$

$$\epsilon_2 = |E_0 - E_2| = 8,80 \text{ эв}.$$

Значения площадей резонанса ^{35}Cl оказались $3,82 \pm 0,5$ эв; $3,86 \pm 0,05$ эв; $3,93 \pm 0,05$ эв для CCl_4 , NaCl и PbCl_2 соответственно.

Максимальная разница в измеренных площадях резонанса составляет $\approx 3\%$ и практически не выходит за пределы экспериментальных ошибок.

С соединениями NaCl и CCl_4 исследовалось влияние температуры образцов на площадь резонанса. Были проведены измерения пропускания образца NaCl ($n_{^{35}\text{Cl}} = 2,13 \cdot 10^{22}$ $1/\text{см}^2$) и образца CCl_4 ($n_{^{35}\text{Cl}} = 1,93 \cdot 10^{22}$ $1/\text{см}^2$) при комнатной температуре и при температуре жидкого азота. NaCl и CCl_4 были упакованы в герметические медные контейнеры (контейнер с NaCl был наполнен для улучшения теплопроводности He^4) и помещены в вакуумный криостат, в котором образцы могли вводиться в пучок и выводиться из него без нарушения вакуума. После измерений с охлажденными образцами криостат был отогрет и были проведены измерения при комнатной температуре. Обработка этих измерений дала следующие значения площадей резонанса ^{35}Cl :

NaCl	300°K	-	$3,85 \pm 0,07$ эв,
NaCl	77°K	-	$3,86 \pm 0,07$ эв,
CCl_4	300°K	-	$3,54 \pm 0,06$ эв,
CCl_4	77°K	-	$3,57 \pm 0,06$ эв.

(В значения площадей не введена поправка на разницу в толщине).

Для контроля были вычислены также площади резонанса 340 эв Mn , присутствующего в дюралевых заглушках нейтронвода (находились вне криостата) и четко проявляющегося в полученных пропусканиях для каждого типа измерений. Площади резонанса во всех четырех измерениях совпадают с точностью около 1%.

Итак, результаты описанных измерений состоят в следующем:

1. Отличие площадей резонанса 405 эв Cl^{35} для образцов из $NaCl$, CCl_4 и $PbCl_2$ не выходит за пределы точности измерений.

2. При охлаждении образца из $NaCl$ до $77^{\circ}K$ площадь хлорного резонанса изменилась на $(10 \pm 0,3)\%$.

3. При охлаждении образца из CCl_4 площадь не изменялась.

Равенство площадей резонанса для всех трех образцов можно объяснить только тем, что различие в доплеровской ширине этих образцов незначительно. (Оценки показывают, что различие Δ в 1,5 раза должно было бы привести к разнице в площадях $\approx 15\%$). Величину Δ можно оценить, исходя из таких соображений. Кристалл $NaCl$ кубический, состоит из атомов, близких по атомному весу, и имеет дебаевский спектр частот. В широком диапазоне температур теплоемкость кристалла описывается при значении дебаевской температуры $\theta = 281^{\circ}$. По-видимому, без больших погрешностей к $NaCl$ можно применить приближение Лэмба. Тогда для доплеровской ширины получаем значение $\Delta = 1,086$ эв. Некоторым указанием на разумность сделанного предположения служит то, что оно дает согласие величины изменения площади резонанса при охлаждении образца до температуры $77^{\circ}K$ с расчетной. (Расчетное изменение $\approx 12\%$, $\Delta(77^{\circ}K) = 0,884$ эв).

Неизменность площади резонанса на образце из CCl_4 , по-видимому, говорит о том, что для этого соединения и при комнатной температуре определяющим доплер-эффект является не перемещение ядер Cl^{35} вместе с молекулами, а внутримолекулярные движения, которые слабо зависят от температуры.

С точки зрения нахождения резонансных параметров по площадям экспериментальных кривых полученные результаты указывают на необходимость тщательного рассмотрения конкретных особенностей соединений, с которыми проводятся измерения, и на важность разработки методов учета доплеровских поправок для более широкого класса соединений, чем это имеется в настоящее время.

Другой задачей данной работы было нахождение параметров уровня 405 эв Cl^{35} . Нами были измерены пропускания пяти образцов $NaCl$ следующей толщины: $6,82 \cdot 10^{21}$; $1,04 \cdot 10^{22}$; $2,08 \cdot 10^{22}$; $4,15 \cdot 10^{22}$; $4,58 \cdot 10^{22}$ ядер Cl^{35} на квадратный сантиметр и проведено одно измерение самоиндикации при толщине детекторного и пропускающего образцов $n_D = n_T = 6,72 \cdot 10^{21}$ ядер Cl^{35} /см² с помощью детектора радиационного захвата^{/11/}. После вычисления площадей резонансов на кривых пропускания и величины

$$S = \frac{A_{D+T} - A_T}{A_D}$$

параметры Γ и $g\Gamma_n$ были найдены методом наименьших квадратов. Метод расчета изложен в Приложении. На рис. 2 приведен "крат" - графики $\Gamma - I(g\Gamma_n)$ для всех площадей пропускания и самоиндикации. Видно, что кривые для самых толстых образцов практически совпадают между собой. Измерения со вторым толстым образцом были выполнены для проверки надежности полученных результатов. Вычисления были проведены для 6 значений Δ в интервале от 0,3 до 2,13 эв. Определяемые значения для крайних значений Δ отличались всего на 10% (0,039 - 0,035 эв). Значение Γ сильно зависит от Δ . На рис. 5 изображена зависимость Γ от принятых значений Δ . Эта кривая лишь раз показывает, насколько важно точно определить Δ для точного нахождения Γ . Мы остановились на значении $\Delta = 1,086$ эв по приведенным выше соображениям. В итоге были получены следующие значения параметров уровня 405 эв Cl^{35} :

$$\Gamma = 0,823 \pm 0,083 \text{ эв,}$$

$$g\Gamma_n = 0,037 \pm 0,02 \text{ эв,}$$

чему соответствует $\sigma_0 = 289 \pm 32$ барн.

Полученное значение σ_0 позволяет заново определить Γ_p и Γ_γ для этого резонанса по данным работы^{/7/}. Авторы этой работы нашли, что $\sigma_0 \Gamma_p = 18 \pm 5$ барн эв и $\sigma_0 \Gamma_\gamma = 120 \pm 10$ барн эв. Отсюда можно получить, что для уровня 405 эв Cl^{35}

$$\Gamma_p = 55 \pm 18 \text{ мэв} \quad \text{и} \quad \Gamma_\gamma = 420 \pm 57 \text{ мэв.}$$

Используя вновь найденные значения Γ , $g\Gamma_n$, Γ_p , можно вычислить Γ_n и Γ_γ для всех возможных значений фактора g в предположении, что этот резонанс обусловлен s - или p -волной ($l = 0$ или $l = 1$). Эти результаты приведены в таблице.

Т а б л и ц а

	$J = 0$ $l = 1$ $g = 1/8$	$J = 1$ $l = 0,1$ $g = 3/8$	$J = 2$ $l = 0,1$ $g = 5/8$	$J = 3$ $l = 1$ $g = 7/8$
Γ_n мэв	296 ± 16	99 ± 5	59 ± 3	42 ± 2
$\Gamma_n + \Gamma_p$ мэв	350 ± 24	154 ± 19	114 ± 18	97 ± 18
$\Gamma_\gamma = \Gamma - \Gamma_p - \Gamma_n$ мэв	575 ± 86	689 ± 85	707 ± 85	726 ± 85

Видно, что найденные значения Γ и $g\Gamma_n$ и значения $\sigma_0 \Gamma_p$ и $\sigma_0 \Gamma_\gamma$ из работы^{/7/} наиболее хорошо согласуются между собой для $J = 0$, $l = 1$. Соображения о том, что уровень 405 эв Cl^{35} является p -резонансом, высказаны и в работе^{/7/} на том основании, что приведенная нейтронная ширина этого уровня для $l = 0$ оказывается меньше на 2 порядка, чем для отрицательного уровня и уровня 17 кэв.

В заключение авторы считают своим приятным долгом поблагодарить Ф.Л. Шапиро за инициативу в постановке задачи и за полезные обсуждения.

ПРИЛОЖЕНИЕ. Определение параметров резонансов методом площадей с помощью электронно-вычислительной машины.

Если ширина функции разрешения аппаратуры сравнима с полной шириной резонанса, определение параметров резонанса по экспериментальным данным производится методом площадей.

Математическая сущность этого метода состоит в решении переопределенной системы уравнений, связывающих значение площадей резонансов с резонансными параметрами, доплеровской шириной, толщиной образцов. Первоначально метод площадей был развит для данных о пропускании^{/10,11/}. Несколько позднее были рассмотрены способы обработки данных о радиационном захвате, рассеянии и самоиндикации^{/12/}. Обычно упомянутая выше система уравнений решается графически. Этот способ отличается большой простотой и наглядностью, но имеет существенные недостатки. Основным из них является недостаточная строгость в отыскании наиболее вероятных значений резонансных параметров и их ошибок. Существенно также, что графический метод требует больших затрат труда. Особенно громоздким он становится в тех случаях, когда необходимо учитывать поправки на крылья резонансов и использовать метод последовательных приближений.

Нами была разработана программа для электронно-вычислительной машины М-20, предназначенная для отыскания параметров резонансов из нелинейной системы уравнений вида

$$A_i \pm \sigma_i = f_i(n_i, \Gamma, g\Gamma_n, \Delta) \quad , \quad i = 1, 2 \dots k, \quad (1)$$

с помощью метода наименьших квадратов и метода последовательных приближений. При этом применялась стандартная программа МНК^{/13/} и вычисленные ранее таблицы, связывающие площадь Юза для резонанса с параметрами резонанса^{/14/}. Производные по параметрам, необходимые в МНК, находились численно при переменном шаге, выбираемом так, чтобы ошибки в производных были малы. По достижении минимума функции наибольшего правдоподобия, которому соответствуют искомые приближения Γ и $g\Gamma_n$, в значения A_i вводились поправки на крылья резонанса

^{x/} В уравнении (1) A_i — площадь резонанса без учета крыльев, σ_i — среднеквадратическая ошибка площади, n_i — толщина образца, Γ и $g\Gamma_n$ — искомые параметры резонанса, Δ — доплеровская ширина. Индекс i определяет толщину образца и тип измерений.

$$\Delta A_i = \frac{n \sigma_0 \Gamma^2}{2} \cdot \frac{1}{\epsilon}$$

(σ_0 — эффективное сечение в максимуме, ϵ — энергетический интервал, где подсчитывалось экспериментальное значение площади), и процедура повторялась заново. Вычисления прерывались, когда изменение параметров при переходе от приближения номер j к приближению $j + 1$ было меньше 1/4 погрешностей параметров.

Следует отметить, что программа строилась на предположении о малости поправок ΔA_i ($A_i \gg \Delta A_i$), поэтому поправки в σ_i не вводились. Программа, не связанная с указанным предположением, должна учитывать изменение σ_i и принимать во внимание, что погрешности в ΔA обусловлены не только ошибками параметров, но и ошибками в E . Последние связаны с энергетической шириной канала анализатора, поэтому могут быть велики, если в нулевом приближении площадь резонанса считается по малому числу каналов.

Результаты вычислений по методу наименьших квадратов анализировались с помощью критерия χ^2 . В нашем случае

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^k \left(\frac{A_i - f_i}{\sigma_i} \right)^2$$

и наиболее вероятное значение $\chi^2 = k - 2$. Вычисленные значения χ^2 выводились на печать вместе с окончательными значениями параметров и их среднеквадратичными ошибками, полученными по МНК на базе статистических ошибок площадей. Обычно для создания возможности визуального контроля за ходом вычислений в процессе счета выводились "крабы" — геометрические места точек (Γ , $g\Gamma_n$), удовлетворяющих уравнениями $A_i = f_i(g\Gamma_n, \Gamma, \Delta, n_i)$ (см. рис. 2).

В практике вычислений возможны 3 случая:

1. Значение χ^2 лежит в пределах доверительного интервала (мы принимали 5% - предел).
2. Значение χ^2 выходит за пределы доверительного интервала, причем основной вклад в значение χ^2 вносятся одним-двумя измерениями.
3. Значение χ^2 выходит за пределы доверительного интервала при примерно равных вкладах в χ^2 от всех измерений.

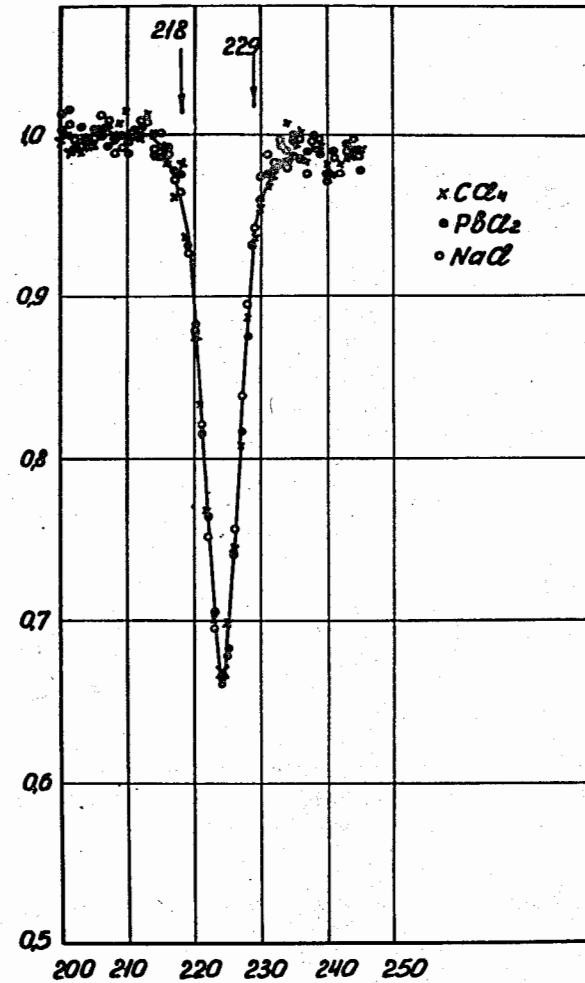
Случай 1 соответствует "хорошим" измерениям. Значение погрешностей параметров должно определяться по общему правилу МНК умножением выведенных значений ошибок на величину $\ell = \sqrt{\frac{\chi^2}{k-2}}$. Во 2-ом случае целесообразно отбросить серии, вносящие чрезмерно большой вклад и повторять вычисления.

Случай 3 возможен тогда, когда в σ_1 не учтены все случайные ошибки, и все измерения равноценны. В этом случае, строго говоря, следует вновь проанализировать способы определения σ_1 и выявить причину расхождений в χ^2 . Если же это не удалось, то при не слишком большом χ^2 можно поступить так, как и в случае 1, т.е. увеличить погрешность параметров на фактор $\ell = \sqrt{\frac{\chi^2}{k-2}}$.

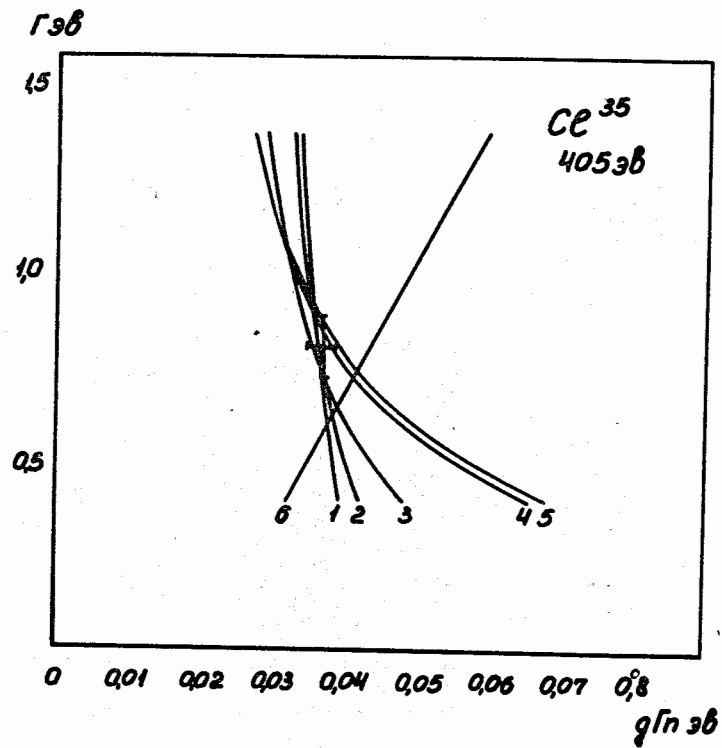
Л и т е р а т у р а

1. Бете. Физика ядра, часть II, М., 1948.
2. Lamb. Phys. Rev., 55, 190 (1939).
3. H.Jackson, J.Lynn. Phys. Rev., 127, 461 (1962).
4. P.Egelstaff, G.Holt. Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids, II, IAEA, Vienna, 1963.
5. R.Brugger, J.Evans. Phys. Rev., 104, 1054 (1957).
6. N.Kashukuev et al. J. Nucl. Energy, A 14, 76 (1961).
7. Ю.П. Попов, Ф.Л. Шапиро. ЖЭТФ, 40, 1610 (1961).
8. Ed. Melkonian. Proceed. Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atom Energy., 4, p. 340 (1956).
9. Г.И. Забиякин, Л.Б. Пикельнер и др. Характеристики ИБРа. Материалы Рабочего совещания по физике медленных нейтронов (7-12 декабря 1961 г.). Препринт ОИЯИ, 956, Дубна, 1962.
10. Г.Е. Блохин, Д.И. Блохинцев и др. Атомная энергия, 10, 437 (1961).
11. И. Вязи, Г.П. Жуков и др. Nucl. Electr., 127, Vienna, 1962.

Рукопись поступила в издательский отдел
1 мая 1965 г.

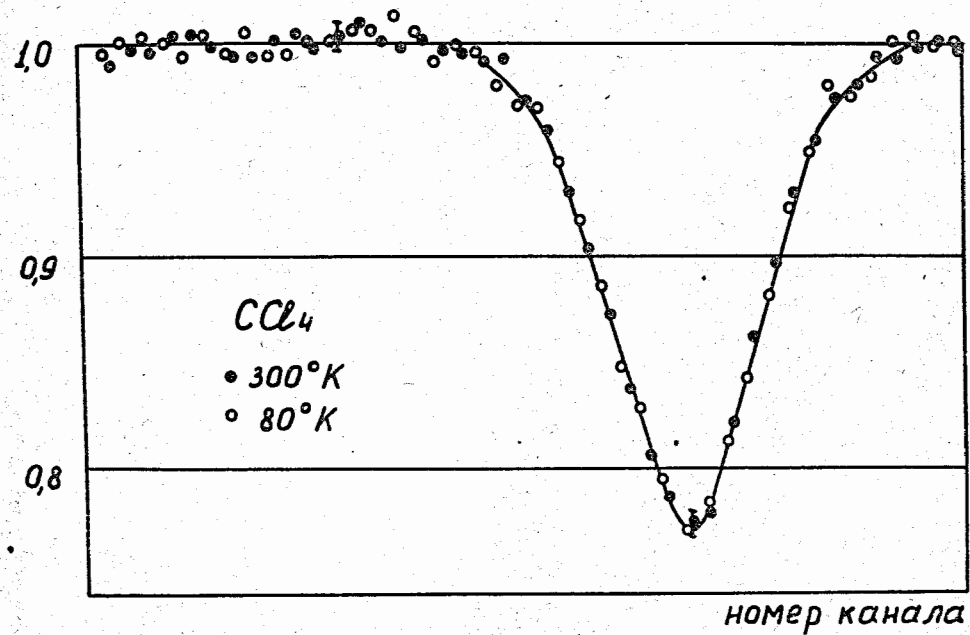


Р и с. 1. Резонанс 405 эв Cl^{35} в соединениях CCl_4 , $NaCl$, $PbCl_2$, толщина образцов по Cl^{35} $n = 2,075 \cdot 10^{22}$ яд/см².

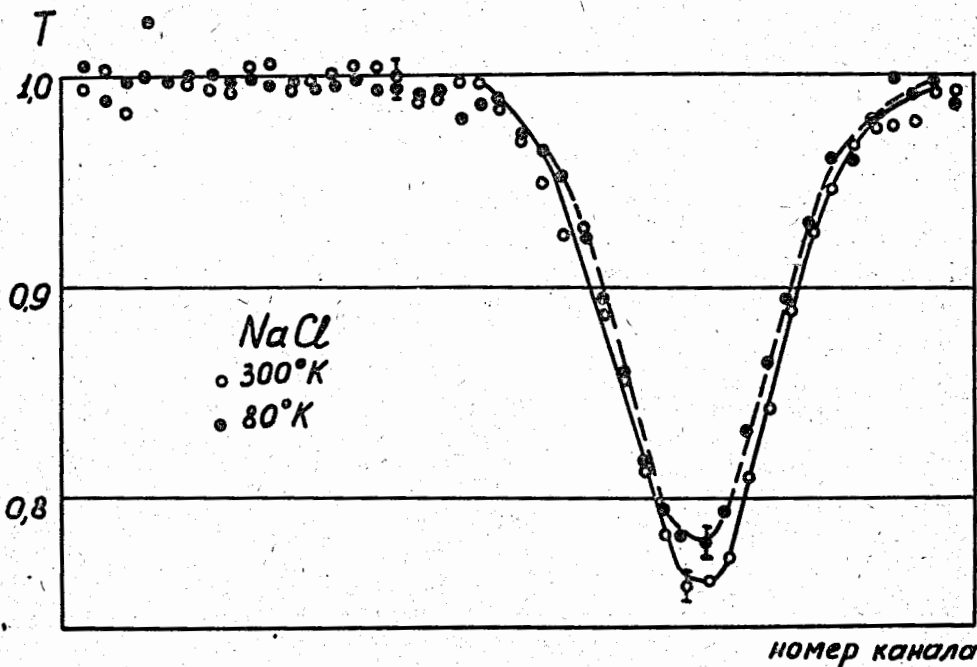


Р и с. 2. Кривые $\Gamma = f(g\Gamma_n)$ для образцов NaCl . Толщина образцов по Ce^{35} :

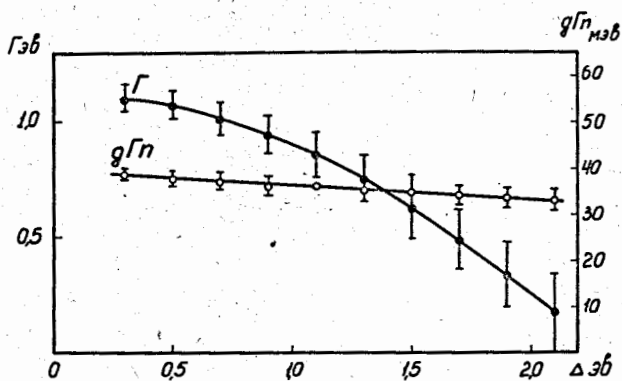
- $n_1 = 6,92 \cdot 10^{21}$ яд/см², пропускание,
- $n_2 = 1,04 \cdot 10^{22}$ яд/см² - " -
- $n_3 = 2,08 \cdot 10^{22}$ яд/см² - " -
- $n_4 = 4,15 \cdot 10^{22}$ яд/см² - " -
- $n_5 = 4,58 \cdot 10^{22}$ яд/см² - " -
- $n_6 = n_D = n_T = 6,72 \cdot 10^{21}$ яд/см², самондичкация.



Р и с. 3. Резонанс Ce^{35} в CCl_4 при $T = 300^\circ\text{K}$ и $T = 80^\circ\text{K}$.



Р и с. 4. Резонанс Cl^{35} в $NaCl$ при $T = 300^\circ K$ и $T = 80^\circ K$.



Р и с. 5. Зависимость $g\Gamma_n$ и Γ резонанса 405 эв от выбора Δ .