

С 342Г2

С-176

ДК857, 7958,

31/VIII-67

754, 61, С 29-36

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

РЗ - 3413



Г.С. Самосват, Ю.С. Саясов, В.Т. Чубурков

РАССЕЯНИЕ ЭЛЕКТРОНВОЛЬТНЫХ НЕЙТРОНОВ
МОЛЕКУЛАМИ ВОДЫ

ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

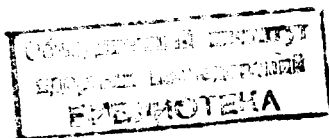
1967.

5232/1 мр.

РЗ - 3413

Г.С. Самосват, Ю.С. Саясов, В.Т. Чубурков

РАССЕЯНИЕ ЭЛЕКТРОНВОЛЬТНЫХ НЕЙТРОНОВ
МОЛЕКУЛАМИ ВОДЫ



§ 1. В в е д е н и е

Большинство экспериментальных работ, посвященных исследованию взаимодействия нейтронов с ядрами, входящими в состав молекул, относится к области небольших энергий нейтронов, меньших 1 эв. Это объясняется, в первую очередь, сравнительной простотой получения и регистрации мощных пучков таких нейтронов. Между тем область энергий выше 1 эв представляет не меньший интерес для исследования молекулярных сред и позволяет анализировать различные тонкие эффекты, расшифровка которых по спектрам медленных нейтронов практически невозможна.

На основании ряда теоретических исследований, суммированных в обзоре^{1/}, общие представления о рассеянии электронвольтовых нейтронов ядрами, входящими в состав молекул, можно сформулировать следующим образом. При достаточно большой энергии падающего нейтрона и, следовательно, при достаточно большой (как правило) передаче энергии ϵ от нейтрона к рассеивающему ядру (порядка нескольких эв) эффективное время передачи энергии $\approx h/\epsilon$ оказывается значительно меньшим периода молекулярных колебаний, т.е. $h/\epsilon \ll 1/\omega$, где ω — характерная частота молекулярных колебаний рассеивающего ядра. Иначе говоря, квантовое состояние молекулы не успевает измениться существенным образом. Поэтому в случае, когда $1/\epsilon \ll 1/\omega$, химически связанное ядро ведет себя как квазисвободное, и молекулярная связь проявляется только через импульсный разброс, которым обладает ядро из-за наличия химических связей.

Очевидно, что при указанных условиях расчеты дважды дифференциального сечения рассеяния нейтронов $\frac{d^2 \sigma}{d\epsilon d\Omega}$ должны быть значительно более про-

стыми, чем в случае медленных нейтронов, так как они сводятся только к правильному учету импульсных распределений рассеивающих "квазисвободных" ядер.

В свою очередь, такие импульсные распределения, которые, вообще говоря, могут учитывать всякого рода тонкие особенности молекулярного строения (например, различные эффекты негармоничности, эффекты связи между вращением и колебанием молекулы, а также эффекты взаимодействия между молекулами в конденсированных средах), поддаются сравнительно легкой расшифровке в рамках указанной картины на основании измеренных спектров нейтронов. Отметим, что на этих соображениях была основана выдвинутая В.И. Гольданским еще в 1956 году^{/2/} идея метода молекулярной спектроскопии, т.е. исследования свойств молекул по спектрам рассеянных "быстрых" нейтронов.

Описанные ниже эксперименты имели целью отработку методики изучения спектров рассеяния электронвольтовых нейтронов, предложенную Ф.Л. Шапиро^{/3/} и основанную на фиксации конечной энергии нейтрона с помощью резонансного детектора, а также проверку изложенных выше теоретических представлений, суммированных в работе^{/1/}. В качестве объекта исследования была выбрана вода ввиду сравнительной легкости экспериментов с нею и в связи с тем, что все необходимые для расчета параметры молекулы H_2O можно считать известными.

§ 2. Методика эксперимента

Сущность метода резонансного детектора будет ясной из описания применявшейся установки, схема которой изображена на рис. 1^{х)}. Пучок нейтронов импульсного реактора ИБР^{/4/}, пройдя расстояние 250 м, через коллиматор 2 попадает на образец 1, представляющий собой плоский алюминиевый контейнер площадью $7 \times 20 \text{ см}^2$, установленный под углом α к направлению пучка и заполненный дистиллированной водой. Рассеиваемые образцом под углами θ_1 и θ_2 нейтроны регистрируются двумя детекторами 4, каждый из которых составлен из 10 пропорциональных счетчиков типа СНМО-5, наполненных B^{10}F_3 . Для уменьшения фона посторонних нейтронов детекторы были помещены в защиту 5

х) В работе^{/3/} использовалась аналогичная установка и были проведены измерения на графите и LiF .

из парафина с B_4C и кадмия. Импульсы обоих детекторов сортируются по времени пролета нейтронов от реактора до детекторов на временном анализаторе. Поскольку расстояние от образца до детекторов (80 см) много меньше полной пролетной базы, то получаемые временные распределения зарегистрированных нейтронов характеризуют собой спектр энергий, которыми обладали эти нейтроны до рассеяния на образце.

Если взять фильтр с узкой полосой поглощения нейтронов (в работе использовалась фольга из золота толщиной 0,04 мм, у которого имеется сильный нейтронный резонанс при энергии 4,81 эв) и поставить его в пучок нейтронов до образца, то в спектрах зарегистрированных нейтронов от обоих детекторов появится глубокий провал при энергии, равной энергии этой полосы. На рис. 2 показан спектр поглощения золотой фольги, преобразованный к энергетической шкале. Провал в соответствующем спектре пропускания достигает практически нуля, а его ширина 0,57 эв определяется свойствами фильтра и энергетическим разрешением всей установки.

Если же такие фильтры поместить непосредственно перед детекторами, то положения провалов в спектрах будут соответствовать энергиям тех нейтронов, которые после рассеяния на образце под заданным углом энергетически попадают в полосу поглощения фильтра, а их форма теперь определяется также и свойствами образца, т.е. величиной передачи энергии между нейтронами и ядрами.

Таким образом, проводя измерения с фильтрами перед детекторами, можно получать информацию о процессе рассеяния нейтронов различными веществами. При этом важно, чтобы ширина линии поглощения фильтра была значительно меньше величины средней передачи энергии в акте рассеяния.

§ 3. Обработка данных и результаты

Было получено 8 временных спектров при углах рассеяния $\theta_1 = 31^\circ$ и $\theta_2 = 44^\circ$ для трех образцов воды с толщинами 1 мм, 2 мм и 4 мм. На рис. 3 в качестве примера приведены экспериментальные распределения для образца толщиной 1 мм. На обоих спектрах видно по одному широкому провалу глубиной порядка 20%, соответствующему рассеянию нейтронов на атомах водорода, вхо-

дящих в состав молекул воды. Провалы от рассеяния на кислороде и алюминии контейнера в пределах ошибок не обнаруживаются. Все остальные кривые весьма похожи на приведенные на рисунке, причем положения минимумов на всех кривых удовлетворительно согласуются с величинами, получающимися из формулы для рассеяния нейтрона на неподвижном протоне:

$$E_0 = E' / \cos^2 \theta, \quad (1)$$

где конечная энергия рассеянного нейтрона $E' = 4,91$ эв (как это вытекает и из теории^{1/}).

Дальнейшая обработка сводилась к следующему. Через точки с обеих сторон от провала проводилась от руки гладкая кривая, как указано на рис. 3, и ординаты точек в районе провала вычитались из соответствующих ординат кривой. Получаемые таким путем спектры поглощения нейтронов золотым фильтром, предварительно нормированные на неравномерный спектр нейтронов, регистрируемых детектором (та же самая гладкая кривая), изображались графически в шкале энергий (см. пример на рис. 4). Через полученные точки опять проводились гладкие кривые, которые мы характеризуем половиной ширины $\Delta E_{\text{эксп}}$ по левому склону на половине высоты пика.

В величины $\Delta E_{\text{эксп}}$ вносились поправки на аппаратную ширину линии $\Delta E_{\text{апп}}$ и ширину ΔE_{θ} , связанную с конечным угловым разрешением установки. Исправленная ширина вычислялась по формуле:

$$\Delta E_{\text{испр}} = \sqrt{\Delta E_{\text{эксп}}^2 - \Delta E_{\text{апп}}^2 - \Delta E_{\theta}^2}.$$

Численные значения $\Delta E_{\text{апп}}$ получались из ширины пика 0,57 эв на рис. 2, соответствующей энергии нейтронов 4,9 эв, которая пересчитывалась к значениям энергии 6,7 и 9,5 эв с использованием известной функции энергетического разрешения установки, а ΔE_{θ} вычислялись путем дифференцирования формулы (1) по θ и использования геометрии образца и детекторов.

Все числовые результаты сведены в таблице. Как видно из таблицы, все значения $\Delta E_{\text{испр}}$ для данного угла θ находятся в разумном согласии друг с другом, а величины поправок, т.е. разности $\Delta E_{\text{эксп}} - \Delta E_{\text{испр}}$, не превосходят разброса между отдельными значениями $\Delta E_{\text{испр}}$.

Можно было ожидать, что с ростом толщины образца будет возрастать и ширина пика за счет вклада от процессов многократного рассеяния нейтронов в образце. Однако как $\Delta E_{\text{эксп}}$, так и не приводимые нами полные ширины пиков с учетом обоих склонов не обнаруживают заметной корреляции с толщиной образца. В этих условиях мы вправе считать, что влияние многократного рассеяния не выходит за пределы ошибок, усреднить полученные результаты и дать ошибку как среднее отклонение от среднего:

$$\Delta E = \overline{\Delta E}_{\text{испр}} = \begin{matrix} (1,9 \pm 0,2) & \text{эв при} & \theta = 31^\circ \\ (3,4 \pm 0,3) & \text{эв при} & \theta = 44^\circ. \end{matrix}$$

Т а б л и ц а

№№ пп	Толщина образца	θ	α	$\Delta E_{\text{эксп}}$ эв	$\Delta E_{\text{апп}}$ эв	ΔE_{θ} эв	$\Delta E_{\text{испр}}$ эв	Время изме- рения, час
1.	1 мм	31°	60°	1,9	0,58	0,28	1,78	32,0
2.	2 мм	31°	60°	2,2	0,58	0,28	2,10	39,5
3.	4 мм	31°	60°	1,8	0,58	0,28	1,68	20,6
4.	4 мм	31°	135°	2,2	0,58	0,41	2,08	15,5
5.	1 мм	44°	60°	3,7	0,60	0,49	3,62	32,0
6.	2 мм	44°	60°	3,4	0,60	0,49	3,31	39,5
7.	4 мм	44°	60°	3,8	0,60	0,49	3,73	34,8
8.	4 мм	44°	135°	3,2	0,60	0,97	3,00	15,5

§ 4. Теоретические формулы и их сопоставление с результатами эксперимента

Внутримолекулярные колебания для воды, находящейся при комнатной температуре (что и было в экспериментах), можно считать вполне гармоническими. В этом случае сечение рассеяния нейтрона атомом водорода в элемент телесного угла $d\Omega$ с потерей энергии $d\epsilon$ дается формулой (см. /1/, стр. 73), отвечающей модели квадсвободного рассеяния и справедливой с относительной точностью порядка $\sqrt{\omega/\epsilon}$ x):

х) В дальнейшем используется система единиц, в которой постоянная Планка и постоянная Больцмана приняты равными единице.

$$\frac{d^2 \sigma}{d\epsilon d\Omega} = 4 |F_H|^2 \cdot \frac{k'}{k} < \frac{1}{\sqrt{2\pi R\omega(\vec{n})}} \exp \left[-\frac{(\epsilon - R)^2}{2R\omega(\vec{n})} \right] >, \quad (2)$$

где F_H - амплитуда рассеяния нейтрона свободным протоном; \vec{k} и \vec{k}' - импульсы нейтрона до и после рассеяния, $R = \frac{(\vec{k}' - \vec{k})^2}{2m}$ энергия отдачи атома водорода; m - масса протона и $\omega(\vec{n})$ - эффективная энергия рассеивающего атома, включающая как эффекты молекулярного колебания, так и эффекты поступательного и вращательного движений:

$$\omega(\vec{n}) = \sum_i (\vec{c}_i \vec{n})^2 \omega_i \text{cth} \frac{\omega_i}{2T} + 2T \vec{n} \hat{m}^{-1} \vec{n}.$$

Здесь \vec{c}_i - амплитудные векторы для рассеивающего атома, выраженные в единицах $1/m$ и связанные с силовыми постоянными молекулы, T - температура и \hat{m} - тензор масс для рассеивающего ядра, компоненты которого выражены в единицах m . Вектор \vec{n} , принимающий произвольные направления в пространстве, характеризует ориентацию молекулы, а символ $\langle \rangle$ означает усреднение по ориентациям молекулы, т.е. интегрирование по $d\vec{n}/4\pi$. Отметим, что в формуле (2) поступательное и вращательное движения молекулы предполагаются свободными.

Результат сопоставления теории с экспериментом приведен на рис. 5, где экспериментальные точки представляют собой сумму всех спектров, относящихся к данному углу рассеяния. Сплошные кривые на рисунке получены на основе формулы (2) путем численного интегрирования, а пунктирные кривые отвечают упрощенной теоретической формуле

$$\frac{d^2 \sigma}{d\epsilon d\Omega} = 4 |F_H|^2 \frac{1}{\sqrt{\pi} \Delta} \exp \left[-\frac{(E - E_0)^2}{\Delta^2} \right], \quad (3)$$

где

$$\Delta^2 = \frac{2 \sin^2 \theta}{\cos^4 \theta} E' \bar{\omega}, \quad (4)$$

полученной из (2) путем замены строгого усреднения введением средней величины

$$\bar{\omega} = \langle \omega(\vec{n}) \rangle = (0,17 + 1,1T) \text{ эв} \quad \bar{\omega} = 0,2 \text{ эв} \quad (\text{при } T = 300^\circ \text{K})$$

и с использованием предположения, что $E - E_0 \ll \Delta$. Необходимые для расчетов константы для молекулы N_2O заимствованы из [5].

Если из экспериментальных значений ширины ΔE найти параметр Λ в гауссовом распределении (3), то по формуле (4) можно определить экспериментальные значения средней частоты $\bar{\omega}$. Соответствующие вычисления приводят к такому результату:

$$\bar{\omega} = (0,26 \pm 0,06) \text{ эв при } \theta = 31^\circ,$$

$$\bar{\omega} = (0,24 \pm 0,04) \text{ эв при } \theta = 44^\circ.$$

Итак, сравнивая теорию с экспериментом, можно заключить, что положения максимумов наблюдаемых распределений, а также их ширины удовлетворительно согласуются с теоретическими. Отношение высот максимумов распределений, отвечающих двум разным углам рассеяния 31° и 44° и одному и тому же числу рассеянных нейтронов, равно 1,7, также примерно совпадает с теоретической величиной этого отношения, равной $\Lambda(44^\circ) / \Lambda(31^\circ) = 1,9$. Теория также передает наблюдаемую на опыте асимметрию в энергетических распределениях рассеиваемых нейтронов. Некоторое количественное расхождение, заметное при угле рассеяния 31° , возможно, объясняется какими-то неучтенными погрешностями эксперимента, а также, возможно, проявлением эффектов жидкого состояния, неучтенных в теории, и ошибками, связанными с использованием приближения квазисвободной частицы, которые могут иметь порядок 10%. В целом, однако, нам представляется возможным сделать вывод, что эксперимент подтверждает все качественные выводы теории [1] и находится с ней также в удовлетворительном (учитывая значительные экспериментальные ошибки) количественном согласии.

Нам представляется также, что после дальнейшего усовершенствования описанной экспериментальной методики (повышения точности измерений, разработки процедуры измерения абсолютной величины сечения рассеяния) она может быть использована для количественного определения некоторых молекулярных констант (например, силовых постоянных), а также для исследования различных эффектов негармоничности внутримолекулярных колебаний.

Отметим также, что факт подтверждения модели "квазисвободного" рассеяния связанными ядрами позволяет, по нашему мнению, также считать правильной и общую картину неупругих процессов, происходящих в молекуле под действием

электронвольтовых нейтронов^{/6/}. Согласно этой картине, такие неупругие процессы распадаются на два независимых этапа; в течение первого нейтрон передает связанному ядру некоторую энергию, которая в дальнейшем (второй этап) затрачивается на различные неупругие процессы, происходящие в молекуле. Поскольку на спектрах рассеянных нейтронов эти последующие процессы (например, диссоциация молекулы) совершенно не сказываются, получение на основании этих спектров каких-либо сведений об этих неупругих процессах (например, об энергии связи молекулы) следует считать невозможным.

Авторы выражают свою признательность Ф.Л. Шапиро и Ю.А. Александрову за полезные обсуждения, а также Г.К. Иванову за помощь в теоретических расчетах.

Л и т е р а т у р а

1. Г.К. Иванов, Ю.С. Саясов. УФН, 90, 47 (1966).
2. В.И. Гольданский. ЖЭТФ, 31, 717 (1956).
3. Т.А. Мачехина, З.И. Огжевальский, Ф.Л. Шапиро. Материалы рабочего совещания по физике медленных нейтронов (7-12 декабря 1961 г.). Препринт ОИЯИ 956, Дубна 1962, стр. 180.
4. Б.Н. Бунин, И.М. Матора, С.К. Николаев, Л.Б. Пикельнер, И.М. Франк, Е.П. Шабалин, Ф.Л. Шапиро, Ю.С. Язвицкий. Доклад на III Международной конференции ООН по использованию атомной энергии в мирных целях, 28/P/324, 1964.
5. Е. Вильсон, Д. Дешиус, П. Кросс. Теория колебательных спектров молекул, М., ИЛ, 1960.
6. Г.К. Иванов, Ю.С. Саясов. Материалы рабочего совещания по неупругому рассеянию медленных нейтронов. Препринт ОИЯИ 2081, Дубна 1965, стр. 24.

Рукопись поступила в издательский отдел
29 июня 1967 г.

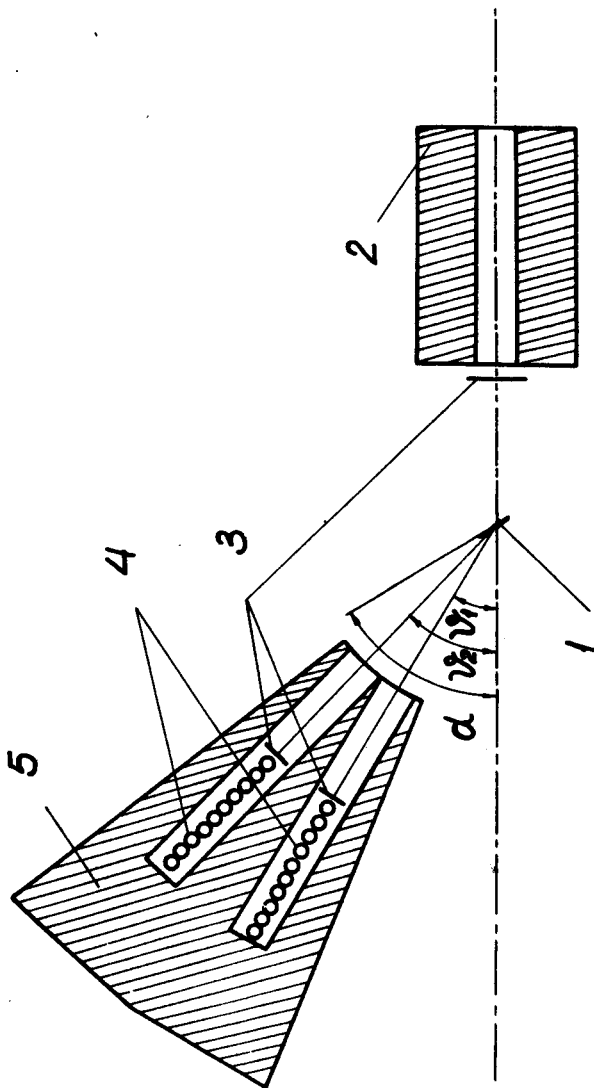


Рис. 1. Схема экспериментальной установки. 1 - рассеиватель; 2 - коллиматор; 3 - фильтры из золотой фольги; 4 - детекторы нейтронов; 5 - защита детекторов.

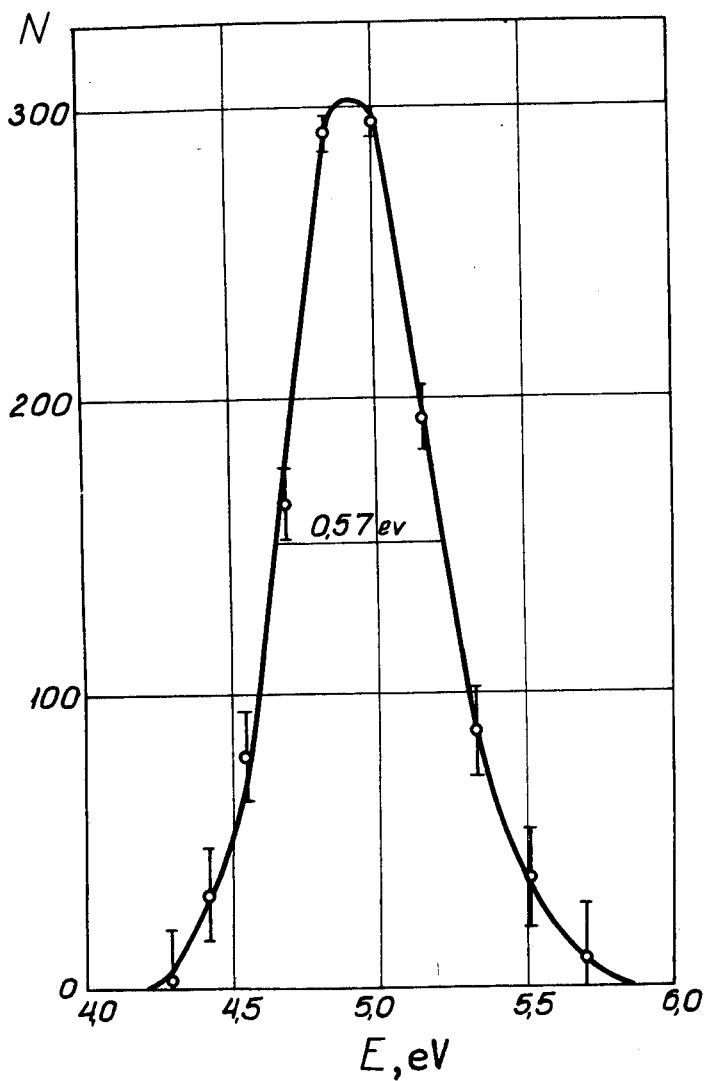


Рис. 2. Спектр поглощения нейтронов в фильтре, полученный при установке фильтра в первичном пучке нейтронов.

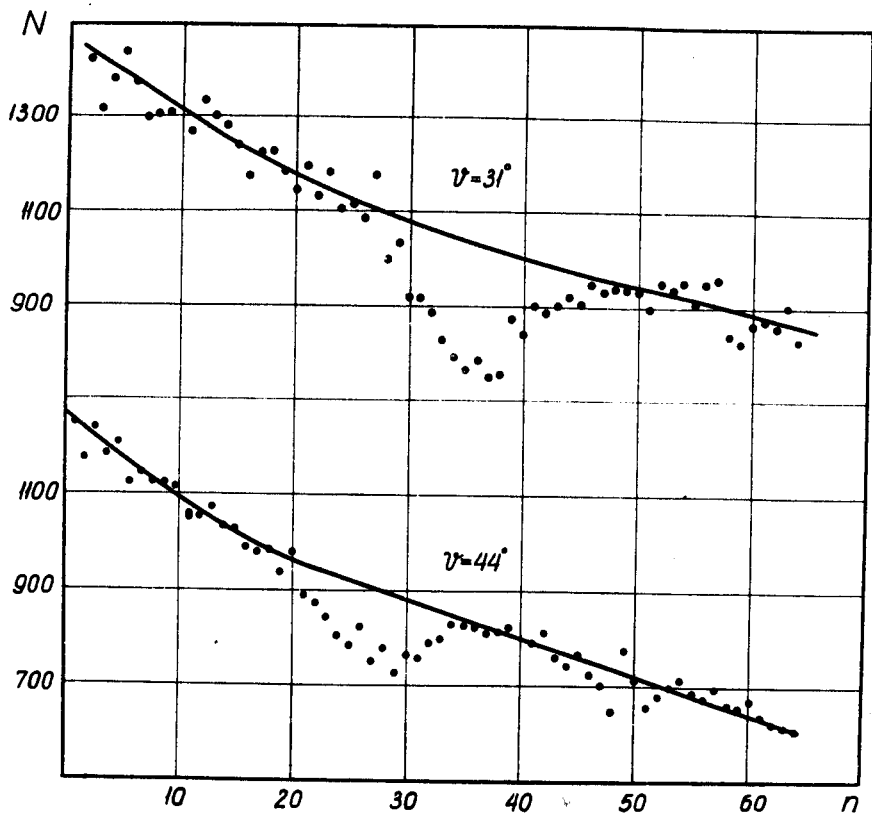


Рис. 3. Временные спектры рассеянных нейтронов, полученные с образцом толщиной 1 мм. N - число зарегистрированных импульсов, n - номер канала анализатора.

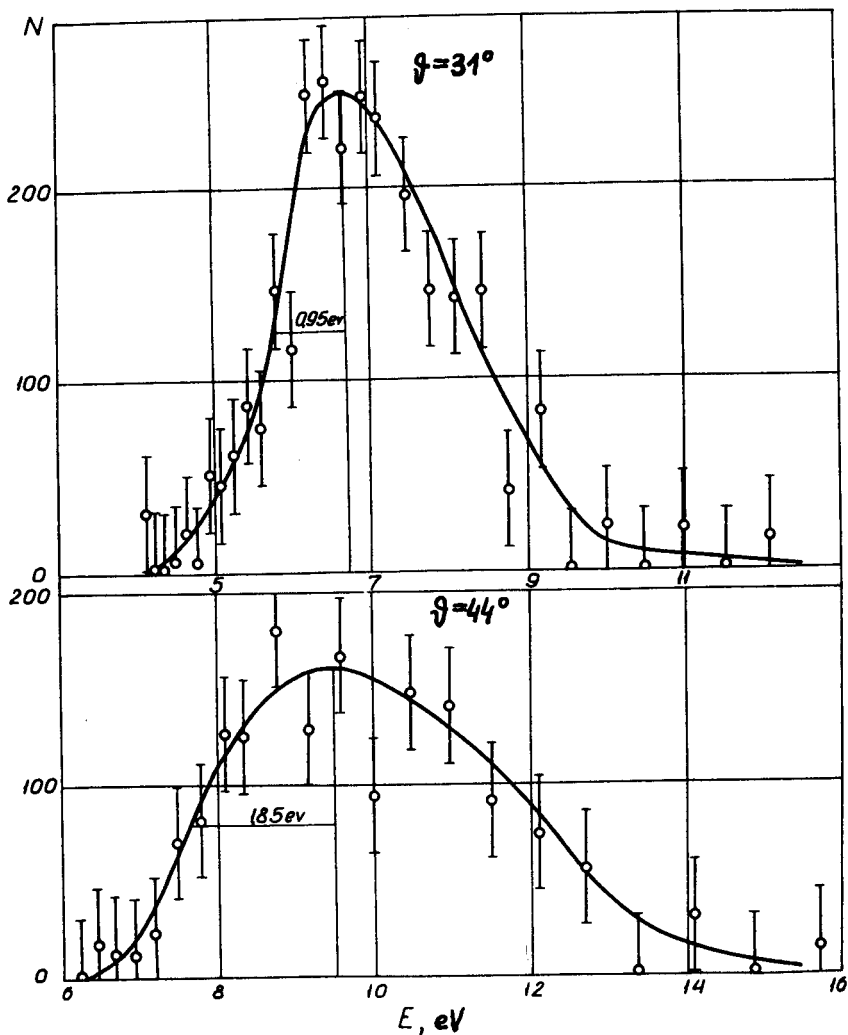


Рис. 4. Энергетические спектры нейтронов, поглощаемых фильтром после рассеяния на образце. Получены путем обработки аппаратурных спектров, изображенных на рис. 3.

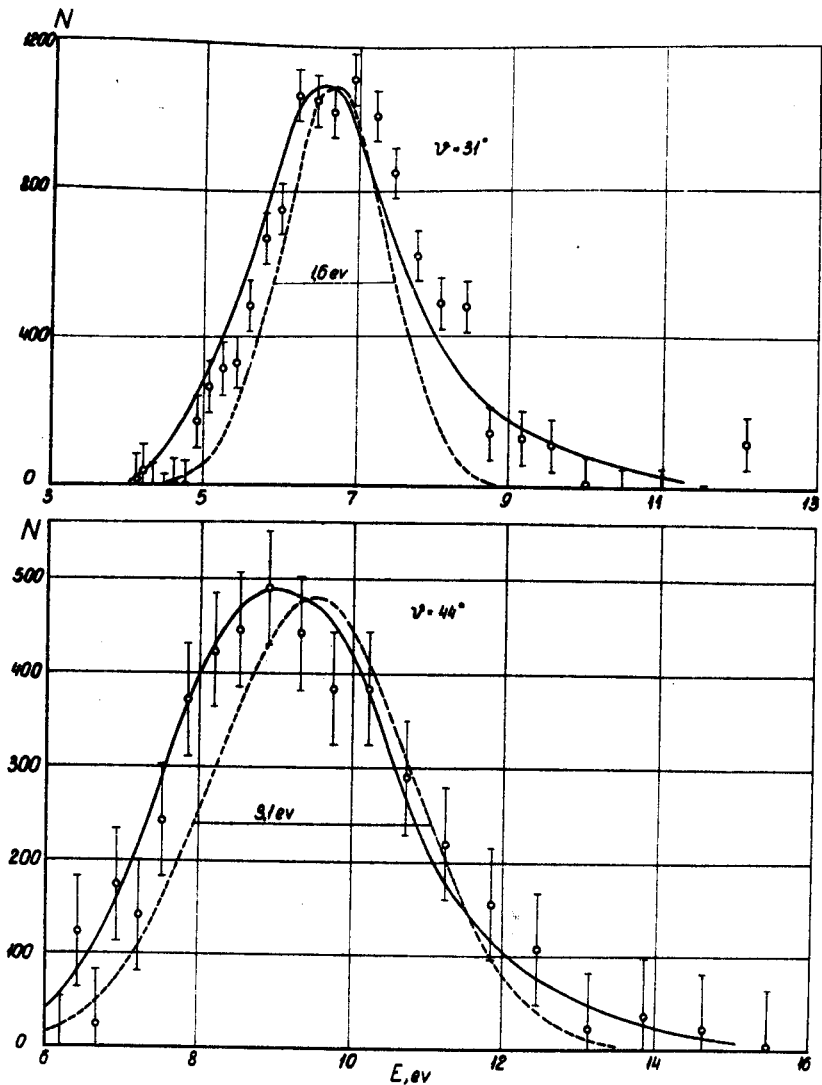


Рис. 5. Сравнение эксперимента с теорией. Экспериментальные точки - сумма всех измерений при данном угле рассеяния. Кривые изображают теоретические расчеты: сплошные - по формуле (2), пунктирные - по формуле (3).