ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ ДУБНА

P3 - 7745

20/0-74

Ю.А.Александров, Т.А.Мачехина, Л.Н.Седлакова, Л.Е.Фыкин

-18 -18

1950/2.24

......

A-465

ОБ ИЗМЕРЕНИИ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ МЕЖДУ НЕЙТРОНОМ И ЭЛЕКТРОНОМ МЕТОДОМ ДИФРАКЦИИ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ НА МОНОКРИСТАЛЛАХ ВОЛЬФРАМА-186



ΛΑБΟΡΑΤΟΡИЯ ΗΕЙΤΡΟΗΗΟЙ ФИЗИНИ

P3 - 7745

Ю.А.Александров, Т.А.Мачехина, Л.Н.Седлакова, Л.Е.Фыкин

ОБ ИЗМЕРЕНИИ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ МЕЖДУ НЕЙТРОНОМ И ЭЛЕКТРОНОМ МЕТОДОМ ДИФРАКЦИИ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ НА МОНОКРИСТАЛЛАХ ВОЛЬФРАМА-186

Направлено в ЯФ

Объединенный институт
адерных всследованый
BNGJINOTEKA

Александров Ю.А., Мачехина Т.А., Седлакова Л.Н., РЗ - 7745 Фыкин Л.Е.

Об измерении взаимодействия между нейтроном и электроном методом дифракции медленных нейтронов на монокристаллах вольфрама-186

Проведены нейтронографические исследования монокристаллов из двух разных изотопических смесей вольфрама, обогащенных изотопом ¹⁸⁶ W и имеющих противоположные по знаку амплитуды когерентного рассеяния. Показано, что теоретическое описание результатов становится возможным при введении гипотезы о дополнительном рассеянии, дающем вклад в брэгговские пики.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1974

Alexandrov Yu.A., Machekhina T.A., Sedlakova L.N., Fykin L.E. P3 - 7745

On the Neutron-Electron Interaction Measurement by the Method of Slow Neutron Diffraction on Single Crystals of Tangsten-186

Neutron-diffraction investigations are carried out for single crystals from two isotope mixtures of tangsten enriched by 186 W isotope and having the contrary in sign amplitude of coherent scattering. It is shown that the theoretical description of the results is possible when introducing the hypothesis about an additional scattering contributing into the Bragg peaks.

> Preprint. Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 1974

©1974 Объединенный институт ядерных исследований Дубна

Наиболее точные значения a_{ne} -амплитуды рассеяния нейтрона на электроне при переданном импульсе, близком к нулю, были получены независимыми методами в работах /1-3/:

 $a_{ne} = /-1,30 \pm 0,03/.10^{-16} cm/1/$ $a_{ne} = /-1,56 \pm 0,04/.10^{-16} cm/2/$ $a_{ne} = /-1,427 \pm 0,023/.10^{-16} cm/3/.$

В амплитуду a_{ne} главный вклад, равный -1,47.10⁻¹⁶ см, вносит так называемый член Фолди^{/3}, связанный с магнитным моментом нейтрона, однако, как следует из приведенных значений a_{ne} , остается неясным, имеется ли дополнительный вклад в амплитуду a_{ne} величины, обусловленной внутренней структурой нейтрона, его электрическим среднеквадратичным раднусом.

Основным методическим недостатком работ $^{/1-3/}$ является очень малая величина наблюдаемого эффекта /<1%/ на фоне сильного ядерного взаимодействия. В работах $^{/5-7/}$ был предложен новый метод измерений a_{ne} , основанный на изучении дифракции медленных нейтронов на монокристалле вольфрама-186. При применении этого метода эффект от n-e -взаимодействия возрастает до нескольких десятков процентов. В настоящей работе приводятся некоторые экспериментальные результаты, полученные в 1971-72 гг. при нейтронографическом изучении монокристаллов вольфрама-186.

1. МЕТОД И ЭКСПЕРИМЕНТ

Изотопическая смесь вольфрама, обогащенная изотопом ¹⁸⁶W, имеющим отрицательную амплитуду рассеяния ^{/6/} может иметь очень малую амплитуду когерентного рассеяния $b = a + Zfa_{ne}$, где Z - число электронов в атоме, f - атомный формфактор вольфрама*, a - amплитуда ядерного рассеяния.

Для проведения нейтронографических экспериментов были изготовлены два монокристалла-шарика Ø 5 ммиз двух разных изотопических смесей. Одна из них содержала 90,7% 186%. В специально поставленном эксперименте /8/ методом фильтров Кристиансена была определена для этой смеси величина

 $b_{1,0} = /-0,0466 \pm 0,0006/.10^{-12}$ см при $\lambda = 15$ Å и f = 1, где λ - длина волны нейтронов.

Вторая изотопическая смесь приготовлялась из первой добавлением к ней 14% естественной изотопической смеси вольфрама, имеющей известную когерентную амплитуду рассеяния

 $b_{nat} = /0,4771 \pm 0,0013/.10^{-12} см^{/9/}.$ Таким образом, когерентная амплитуда рассеяния второй смеси

b2,0= -0.86. 0,0466 + 0,14. $\tilde{0}$,4771 = 0,0267.10⁻¹² cM πpu $\lambda = 15 Å$.

Нейтронографические измерения проводились на кристаллическом монохроматоре реактора филиала Физикохимического института им. Карпова, выделяющем нейтроны с длиной волны $\lambda = 1,167$ Монохроматором служил кристалл меди с мозаичностью $\eta_{\rm M} = 40$. Использовалось отражение /331/. Угол скольжения монохроматора составлял $\theta_{\rm M} = 45°$, угол раствора первичного коллиматора $a_0 = 30$. Примесь нейтронов с длиной волны $\lambda/2$ не превышала О,5%, $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$ = 2%. После отражения от монохроматора пучок проходил через стальной коллиматор с угловым раствором а₁ = 40' и попадал на изучаемый монокристалл. Мозаичность кристалла была около 40 . Дифрагированные на монокристалле нейтроны регистрировались пропорциональным счетчиком, наполненным ³Не до давления 10 атм. Счетчик находился на расстоянии 40 см от монокристалла образца и имел коллимационное окно размером 20 х 30 мм².Все измерения проводились

*Зависимость f ($\frac{\sin \theta}{\lambda}$) можно найти в / 17 /

методом $\theta - 2\theta$. Апертура детектора и размеры коллимационной системы были выбраны таким образом, чтобы удовлетворить условиям, при которых измеряется полная интегральная интенсивность при всех отражениях /10/. Выполнение этих условий контролировалось. Так, для передних и задних рефлексов экспериментально определялись размеры отраженного от кристалла пучка. Эти размеры оказались значительно меньше углового раствора детектора как по горизонтали, так и по вертикали. Так же экспериментально был исследован вопрос о возможном перемещении отраженного пучка по окну детектора при движении образца и детектора. Найдено, что эти перемещения не превышали нескольких миллиметров, следовательно, отраженный пучок не мог выходить за пределы окна. Подтверждением правильности измерений полных интегральных интенсивностей отражений является совпадение угловой зависимости этих интенсивностей с аналогичными измерениями на установке, использованной нами в 1968-69 гг. /7/, а также на дифрактометре Ленинградского института ядерной физики. Эти установки сильно отличались по своей геометрии*, тем не менее, как будет видно из дальнейшего, результаты измерений полностью совпадают.

Измерялись интегральные интенсивности I (hkf)восьми отражений: /110/, /200/, /220/, /310/, /400/, /330/, /420/, /510/.

Поскольку вольфрам - парамагнетик, то можно полагать, что:

$$I_{(hk\ell)} = K \{ (a + Z f_{(hk\ell)}a_{ne})^2 + (1 - f_{hk\ell})^2 \gamma^2 ctg^2 \theta_{(hk\ell)} \} .$$

$$A_{(hk\ell)} = \frac{exp(-2Whk\ell)}{\sin 2\theta_{(hk\ell)}}, \qquad /1/$$

*Параметры установки 1968-69 гг. были следующие: монохроматор Рb, отражение /111/, $\lambda = 1,145A$; $\theta_{M}=11^{\circ}$; $a_{0}=2,5^{\circ}$; $a_{1}=30^{\circ}$. где k - постоянный для всех измеренных отражений коэффициент, $A_{(hkl)}$ - фактор поглощения, $\theta_{(hkl)}$ - брэг-

говский угол, $\Psi_{(hk\ell)} = B\left(\frac{\sin\theta}{\lambda}\right)^2 - \phi$ актор Дебая-Валлера, $\gamma^2 \operatorname{ctg}^2 \theta$, где $\gamma = 1/2 \mu \left(\frac{\hbar}{MC}\right) \left(\frac{Ze^2}{\hbar C}\right)$ учитывает швингеровское рассеяние /11/.

Фактор поглощения был определен расчетно, результаты совпали с имеющимися данными /12/, изменения этого фактора от отражения /110/ к отражению /510/ не превышали 4%.

Поскольку в литературе имеются очень противоречивые сведения о величине В фактора Дебая-Валлера для вольфрама /13/нами были предприняты попытки определить этот фактор как расчетно, так и экспериментально. Расчеты были проведены на основе информации о теплоемкости вольфрама и его фононном спектре. Они привели к значениям $B = 0.162 \overset{\circ}{A}{}^2 \mu B = 0.167 \overset{\circ}{A} 2/14/$ Измерения величины В проводились на том же кристаллическом монохроматоре, на котором снимались нейтронограммы монокристаллов - шариков вольфрама-186. Методика заключалась в анализе угловой зависимости интегральной интенсивности дифракционных пиков, возникающих при рассеянии нейтронов на спрессованном порошке естественного вольфрама. Эти измерения, проведенные при $T = 293^{\circ}$ К, дали значение B = 0,19 + 0,02 Å². Помимо этого, на реакторе ИБР - ЗО ОИЯИ методом времени пролета измерялись интегральные интенсивности дифракционных пиков при двух температурах: T = 293°K и T = 80°К. Из измерений со спрессованным порошком естественного вольфрама было получено В = 0,17+0,02 Å² а с цилиндрическим монокристаллом вольфрама-186 B = 0,15 ± 0,01Å²*. При этом температурная зависимость В аппроксимировалась известным. дебаевским приближением /см. формулу /2,28/ в/15//.

* Из этого же образца был приготовлен монокристаллшарик, имеющий амплитуду b₁ < 0. Полученные результаты близки к данным работы/16/, в которой для изотопов¹⁸² W, ¹⁸⁴ W, ¹⁸⁶ W была получена дебаевская температура θ_D /100°K/ = /365 ± 5/° K, что соответствует B /293°K/ = 0,142 ± 0,002Å². Ниже нами принято во всех расчетах B = 0,17Å².

2. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ИХОБСУЖДЕНИЕ

Из /1/ следует, что зависимость величины

$$\left[\frac{I_{(hk\ell)}\operatorname{Sin} 2\theta \exp (2\Psi)}{A_{(hk\ell)}K} - \gamma^{2}\operatorname{ctg}^{2}\theta (1-f)^{2}\right]^{\frac{1}{2}} = a_{+}Zfa_{ne} = b /2/$$

от Zf должна быть линейной, а наклон прямой обусловлен величиной a_{ne} . На *рис. 1* представлены экспериментальные значения амплитуд b двух изотопических смесей вольфрама как функций Zf, полученные из /1/ подстановкой в нее измеренных интенсивностей $I_{(hk \ell)}$.

Абсолютные значения этих амплитуд определены благодаря нормировке на величины $b_{1,0}$ и $b_{2,0}$ в точке Zf = 74*. Значения Zf для различных отражений (hkl) взяты из/17/. Из *рис. 1* следует, что описать экспериментальные результаты линейной функцией от Zf с одним значением a_{ne} не представляется возможным. Более детальное рассмотрение показывает, что такое описание полученных результатов линейной зависимостью вообще неудовлетворительно ($\chi^2 \simeq 65$) В связи с этим был рассмотрен целый ряд возможных причин, приводящих к подобной ситуации. Остановимся кратко на некоторых из них^{*}:

а/ Экстинкция. Ввиду малости сечения рассеяния влиянием экстинкции можно пренебречь. Известный критерий "тонкого кристалла" /см. формулу /3,17/ в/15// в нашем случае "перевыполнен" в 250 раз.

*См. также /7/.



Рис. 1. Экспериментальные значения когерентных амплитуд b₂>0 и b_<0 двух изотопических смесей вольфрама /обработка по формуле /1//. Δ -измерения 1968-69 гг. /7/; о-измерения на монохроматоре ФХИ /1971 г./; о-измерения на дифрактометре ЛИЯФ /1972 г./; о-измерения работы /8/. Сплошные кривые - расчетные для разных значений а_{пе}.

6/. Тепловое диффузное рассеяние /ТДР/. Как показали расчеты по методу /18/ вклад от ТДР в дифракционные пики не превышает 1,5%. Кроме того, известно, что вклад ТДР пропорционален температуре Т и обратно пропорционален λ^3 . При существенном влиянии ТДР эти эффекты были бы заметны в экспериментах по определению фактора Дебая-Валлера при разных температурах, а также при сравнении результатов настоящих измерений с результатами измерений ⁷⁷ 1968-69 гг. /отношение (λ_1 / λ_2)³ = 1,06/.

в/. Влияние примесей, искажающих кристаллическую решетку исследуемых образцов. Различные примеси. искажающие кристаллическую решетку, могут привести к аномально большому значению В /фактор Дебая-Валлера//19/ Как показывают расчеты, при величине В = 0.3 Å² удается описать экспериментальные данные формулой /1/, получив при этом значение а_{ле}, близкое к результатам $\frac{1-3}{}$. Однако, как уже отмечалось выше, расчеты и измерения, проведенные с порошком естественного вольфрама и с цилиндром-монокристаллом вольфрама-186, далн значение В <0,2 Å². Кроме того, на реакторе ИБР-30 был поставлен специальный эксперимент, позволяющий методом времени пролета, измерить интегральные интенсивности при больших $\frac{5107}{\lambda}$ - /отражения /440/, /550/, /660//. Для нормировки амплитуд аналогичные измерения проводились также с очень тонкой /0.1 мм/ пластинкой-монокристаллом естественного вольфрама. Результаты эксперимента приведены на рис. 2. Обработка этих результатов показывает, что значение



Рис. 2. 0 - измерения на монохроматоре ФХИ; ∆ - измерения на ИБР-ЗО /метод времени пролета/. Слишком большое значение амплитуды, полученное в этих измерениях в точке, соответствующей отражению /220/, объясняется экстинкцией в тонкой пластинке естественного вольфрама, используемой для нормировки.

9

В ~ 0,3 \mathbb{A}^2 слишком <u>велико</u>, чтобы описать формулой /1/ точки при Zf \leq -30.

Поскольку не было найдено более простой причины, объясняющей отклонение экспериментальных результатов от теоретической зависимости, в работе /20/было сделано предположение о существовании дополнительного рассеяния, дающего вклад в дифракционные пики. С учетом этой гипотезы формулу /1/ можно записать в виде: *

$$I_{(hk)} = K \{ (a + Zfa_{ne})^{2} + (1 - f)^{2} \gamma^{2} ctg^{2} \theta + p^{2} \} A_{(hk)} \frac{exp(-2W)}{\sin 2\theta_{(hk)}}, /3/$$

где р - амплитуда дополнительного рассеяния, природа которого пока неизвестна. Если принять, что р²-экспоненциально спадающая функция вида

$$p^2 = a(1) \exp[-a(2) (74-Zf)^n]$$
,

где a(1), a(2) и п - варьируемые параметры, то формулой /3/ удается описать всю совокупность имеющихся данных ($\chi^2 \simeq 4$) и определить величину а_{ne}, для которой получается значение a_{ne} = /-1,55 ± O,O2/.10⁻¹⁶ см **. Соответствующие значения амплитуд b₁ и b₂ приведены на *рис.* 3, а зависимость p² от $\frac{Sin\theta}{\lambda}$ - на *рис.* 4. Отно-

шение $\frac{P^2}{(a+Z f a_{ne})^2}$ дл

для используемых изотопических

/4/

смесей вольфрама оказывается порядка 10-20%, следовательно, наблюдать проявление Р² в опытах с естественным вольфрамом практически невозможно.

* Отметим, что гипотеза о дополнительном рассеянии, интерферирующем с ядерной амплитудой, противоречит экспериментальным данным рис. 1.

** Приведенная ошибка - статистическая. Она иллюстрирует возможности метода. Наиболее сильно на значение а _{пе} влияет неопределенность ^В. Изменение В на 4% приводит к изменению а _{пе} на 1%.





В заключение следует заметить, что, несмотря на высокую статистическую точность определения a_{ne} , к приведенному выше результату нужно относиться, конечно, с большой осторожностью, поскольку природа p^2 не выяснена, а также вследствие некоторой неопределенности В.

Авторы благодарны И.М.Франку н Р.П.Озерову за полезные дискуссии, Л.И.Василенко, участвовавшему в одном из этапов измерений, Г.М.Драбкину, В.П. Плахтию и Ю.А.Голосовскому - за предоставленную возможность измерений и помощь при измерениях в ЛИЯФ, А.А.Лошкареву - за помощь при измерениях в ЛИЯФ, А.А.Лошкареву - за помощь при подготовке и проведении экспериментов. Авторы признательны также сотрудникам ЛНФ ОИЯИ, ФХИ им. Карпова и ЛИЯФ, принимавшим участие в многочисленных дискуссиях.



Рис. 4. Зависимость P^2 от Sin θ/λ .Заштрихованная область - коридор ошибок.

Литература

- I. V.E.Krohn, G.R.Ringo. Phys.Rev., 148, 1303 (1966); Phys. Rev., D8, 1305 (1973).
- 2. E.Melkonian, B.M.Rustad, W.W.Havens., Jr. Phys.Rev., 114, 1571 (1959).
- 3. L.Koester. Private communication, 1970.
- 4. L.L.Foldy. Rev. Mod. Phys., 30, 471 (1958).
- 5. Ю.А.Александров. Препринт ОИЯИ 3-3442, Дубна, 1967.
- 6. Ю.А.Александров, М.А.Балагуров, Э.Малишевски, Т.А.Мачехина, Л.Н.Седлакова, Я.Холас. ЯФ, 10, 328 /1969/.

- 7. Yu.A.Alexandrov. JINR Communications, 3-5713, Dubna, 1971,
- 8. Yu.A.Alexandrov, L.Koester, G.S.Samosvat. JINR Communications E3-5371, Dubna: 1970.
- 9. L.Koester, H.Ungerer. Z.Phys, 219, 300 (1969); L.Koester. Private Communication, 1972.
- 10. V.W.Arndt, B.T.M.Willis. Single Crystal Difractometry, Cambridge, 1966. II. C.Shull. Phys.Rev.Lett., 10, 297 (1963).
- 12. Л.И. Миркин. Справочник по рентгеноструктурному анализу поликристаллов. ГИФМЛ, Москва, 1961.
- 13. Solid State Physics, v. 16, Academic Press, New-York-London, 1964.
- 14. Ю.А.Александров, А.М.Балагуров, Г.С.Самосват. Л.Е.Фыкин. Препринт ОИЯИ Р14-5358, Дубна, 1970.
- 15. Дж.Бэкон. "Дифракция нейтронов". ИИЛ, Москва. 1957.
- 16. R.D.Ruth, N.Hershkowitz. Phys.Lett., A43, 203 (1973).
- 17. Don T.Cromes, I.T.Weber. Acta Cryst., 18, 104 (1965).
- 18. M.Cooper, K.Rouse. Acta Cryst., A24, 405 (1968).
- 19 М.А.Кривоглаз. Теория рассеяния рентгеновских лучей и тепловых нейтронов реальными кристаллами. "Наука", Москва, 1967.
- 20. Yu.A.Alexandrov, V.K.Ignatovich. JINR Communications, E3-6294, Dubna, 1972.

Рукопись поступила в издательский отдел 25 февраля 1974 года.