

P3-86-779

Ю.В.Лисичкин*, А.Г.Новиков*, И.Пэдуреану, Г.Ротареску, Н.К.Фомичев*

РАССЕЯНИЕ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ ТЯЖЕЛОЙ ВОДОЙ В ИНТЕРВАЛЕ ТЕМПЕРАТУР (23-200)° С

*Физико-энергетический институт, Обнинск

1. ВВЕДЕНИЕ

Большой интерес исследователей к изучению свойств воды и ее дейтероаналогов вызван широким применением этого вещества в различных областях науки и техники. Новые, быстро развивающиеся отрасли науки и промышленности, в частности атомная энергетика, химия, биология, гидрометеорология и т.д., требуют глубокого, более детального изучения структурно-динамических особенностей воды в широком диапазоне изменения термодинамических переменных.

В последние годы информация о структуре и динамике воды накапливалась благодаря усилиям исследователей, использующих различные экспериментальные методы, включая нейтронную/1-3/ и рентгеновскую/4-6/ дифракцию, некогерентное квазиупругое/7,8/ и неупругое/9-11/ рассеяние медленных нейтронов, а также компьютерную технику/12-13/.

Одним из наиболее прямых методов исследования молекулярной динамики жидкостей в настоящее время является неупругое рассеяние медленных нейтронов. Как известно, из спектра некогерентного рассеяния можно получить информацию о движениях отдельной частицы, тогда как коллективные движения в жидкости проявляются в когерентном рассеянии медленных нейтронов.

Связь между получаемыми в нейтронном эксперименте дважды дифференциальными сечениями /ДДС/ некогерентного и когерентного рассеяния медленных нейтронов с движением частиц вещества установил Ван-Хов^{/14/}, введя в рассмотрение пространственно-временные автокорреляционную Gs(\vec{r} , t) и парную корреляционную Gd(\vec{r} , t) функции. Определение этих функций и основные формулы, связывающие их с результатами нейтронного эксперимента, можно найти, например, в^{/15/}.

Эффекты, связанные с автокорреляциями, применительно к воде изучались в широком диапазоне температур и давлений на образцах H₂0^{/9-11/}. Особенности парных корреляций исследуются на когерентно рассеивающих образцах D₀0.

Следует отметить, что и́меющиеся экспериментальные данные по взаимодействию медленных нейтронов с тяжелой водой на уровне ДДС и закона рассеяния весьма ограничены/7,²¹⁻²⁴/. В частности, систематических исследований температурной зависимости спектров рассеянных нейтронов для D₂0, выполненных в одинаковых экспериментальных условиях, не проводилось.

Хотя результаты ранних работ Брокхауза, Юза, Ларсона и др., носившие качественный характер, показали, что физическая карти∽ на взаимодействия медленных нейтронов с D₂0 близка к той, которую мы имеем для обычной воды^{/25/}, тем не менее могут наблюдать-



1

ся и заметные различия. Действительно, сечение рассеяния дейтерия / σ_D = 7,7 б / сравнимо с сечением рассеяния кислорода / σ_Q = = 3,73 б / и, кроме того, ор на 70% когерентно. В связи с этим применимость некогерентного приближения /см., например. /9// к тяжелой воде требует специального исследования.

Кроме того, физическая картина движения частиц жидкости не может сегодня считаться полной, если не принимать во внимание тройные корреляции. Так, в серии работ П.Игелстаффа с сотрудниками/16-20/ проанализирована роль тройных корреляционных функций при определении термодинамических и кинетических свойств простых жидкостей, а также намечены пути получения информации о тройных пространственно-временных корреляциях из экспериментов по рассеянию медленных нейтронов и рентгеновских лучей. При этом требуются измерения производной по давлению /или температуре/ от закона рассеяния, для чего необходима разработка специальной экспериментальной техники.

С учетом изложенного выше в настоящей работе приведены результаты измерений спектров рассеяния медленных нейтронов на D_0 при температурах 23: 130 и 200°C и описаны особенности использованной при этом аппаратуры. Проводится также краткое обсуждение полученных данных, которое носит предварительный характер.

2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Эксперимент был выполнен на двойном времяпролетном спектрометре медленных нейтронов ДИН-1М, расположенном на одном из пучков импульсного реактора ИБР-30 в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ. Подробное описание спектрометра можно найти в/26,27/.

Используемый в эксперименте образец, помещенный в вакуумную камеру, состоял из 71 кварцевой трубки, заполненной тяжелой водой. Трубки располагались с равномерной плотностью таким образом, что образовывали цилиндр в общими размерами d = 120 мм и h = 155 мм. Температура образца поддерживалась равной 23; 130; 200°С с помощью установки для нейтронных исследований жидкостей в широком диапазоне изменения температур и давлений, описание которой содержит в части 3.

Измерения были выполнены при энергии падающих на образец нейтронов Е₀ = 63,75 мэВ. При этом разрешение в упругом пике составляло $\Delta E_0/E_0 \approx 7\%$.Передачи волнового вектора для упругого рассеяния Q = $4\pi/\lambda \sin\theta/2$ охватывали интервал 1,2 $A^{-1} \leq Q \leq$

 $\leq 9.5 \stackrel{0-1}{\text{A}}$ /углы рассеяния $12^{\circ} \leq 0 \leq 122^{\circ}$ /. Этот интервал соответствует области Q, на которую приходятся осцилляции статического структурного фактора S(Q) и где, следовательно, структура D₀0 может оказывать влияние на динамику ее молекул.

Экспериментальная серия при каждой из температур включала в себя три измерения: на контейнере с тяжелой водой, на пустом контейнере и на ванадиевом цилиндре, геометрически идентичном образцу. Последние данные использовались для оценки разрешающей способности спектрометра в области упругого пика и для абсолютной нормировки измеряемых сечений.

Для корректного учета фона измерения проводились в режиме с осциллирующей кадмиевой заслонкой /28/.

3. УСТАНОВКА ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ ЖИДКОСТЕЙ

Задача поддержания нужного термодинамического состояния исследуемой жидкости решалась в описываемом эксперименте с помощью установки, блок-схема которой представлена на рис.1.

Кроме образца и термостата, расположенных в вакуумной камере спектрометра, установка имеет ряд управляющих систем, из которых в данном эксперименте использовались две: система контроля температуры и вакуумная система.

Система контроля температуры включает в себя высокоточный регулятор температур BPT-3 /10 на рис. 1/, датчиком к которому служит образцовая ПП-термопара; набор измерительных ХК-термопар; цифровой вольтметр Щ-68002, позволяющий измерять термоэдс с точностью 1 мкВ; и самописец КСП-4.

Система ВРТ-3 состоит из трех приборов: измерительного блока типа И-101, регулятора Р-111 и усилителя тиристорного типа У-252. В приборе И-101 сигнал ПП-термопары компенсируется сигналом от встроенного задатчика, и разница этих сигналов усиливается предварительным усилителем. С выхода блока И-101 усиленный сигнал

Рис.1. Блок-схема установки для нейтронных исследований молекулярной динамики жидкостей в широком диапазоне температур и давлений: 1 грузопоршневой манометр МП-600; 2 - образцовый манометр: 3 - сильфонный затвор; 4 - электроконтактный манометр /ЭКМ/; 5 - устройство для наполнения водой; 6 - образновый манометр; 7 - самописец КСП-4: 8 - цифровой



вольтметр Ш-68002; 9 - термопарный переключатель; 10 - ВРТ-3; 11 - жидкий азот; 12 - форвакуумный насос 2HBP-5Д; 13 - вакуумметр ВИТ-3; 14 - адсорбционный угольный насос; 15 - "Норд-250".

2

разбаланса поступает на вход P-111, в котором формируется закон регулирования, и входной сигнал преобразуется в унифицированный сигнал постоянного тока величиной от 0 до 5 мА. Далее сигнал постоянного тока подается на тиристорный усилитель У-252, где он преобразуется в выходной сигнал переменного напряжения, используемый для питания нагревателей термостата. Чтобы избежать выхода из строя нагревателей за счет случайного контакта их спиралей с элементами конструкции термостата, в электрическую схему был введен разделительный трансформатор. Такой способ регулирования позволяет поддерживать температуру в месте расположения ПП-термопары с точностью не хуже ±0,5⁰.

Распределение температуры по объему образца измерялось цифровым вольтметром /8/ типа Щ-68002 с помощью ХК-термопар, одна из которых, кроме того, выводилась на самописец /7/ КСП-4 для аварийного контроля температуры, и составило $\pm 0,5\%$ от среднего значения/то есть $130\pm 0,7^{\circ}$ и $200\pm 1^{\circ}/.$

Конструкция термостата схематически представлена на рис.2. Основными составными частями термостата являются кольцевые спиральные нагреватели /3/, расположенные в фокусе рефлекторов.



Верхняя часть термостата опирается на жесткую раму /4/. которая, в свою очередь, стоит на основании термостата. Вся конструкция крепится на юстировочной подставке /7/. Для уменьшения теплообмена с окружающей средой за счет излучения используются тонкие алюминиевые экраны /1/. В центре термостата расположен образец /5/. /На рис.2 изображен стальной спиральный образец, использованный при измерениях на $H_0^{9/}$. Существенным моментом в получении оптимального распределения температуры по образцу является вакуумирование камеры образца.

Рис.2. Термостат: 1 – алюминиевые экраны; 2 – рефлекторы; 3 – нагреватели; 4 – рама; 5 – образец; 6 – подводящие капилляры; 7 – юстировочная подставка. Вакуумная система установки /см.рис.1/ позволяет производить откачку камеры в три этапа: с помощью вакуумного насоса /12/ 2HBP-5Д через азотную ловушку камера откачивается до давления ~ 10^{-1} Тор, затем включается адсорбционный угольный насос /14/, и начиная с давления ~ 10^{-3} Тор работает только магниторазрядный диодный охлаждаемый насос /15/ "Норд-250", позволяющий получать вакуум в камере ~ 10^{-5} Тор. Давление в камере измеряется вакуумметром /13/ ВИТ-3.

Следует заметить, что в экспериментах описываемого типа в качестве контейнеров могут быть использованы как сменные контейнеры /кварцевые трубки в данном эксперименте/, так и образцы, обеспечивающие возможность изменения термодинамических параметров жидкости /в частности, давления/ без остановки эксперимента и вскрытия камеры образца. Примером такого образца может служить стальной спиральный контейнер, изображенный на рис.2. В этом случае для создания нужного давления используется система контроля давления, основной составной частью которой является грузопоршневой манометр /см. рис.1/ МП-600 /класс точности 0,05/.

Образец, входной и выходной штуцеры которого уплотняются с внутренней стороны нижней крышки камеры образца, соединяется с водяной магистралью /нержавеющая трубка диаметром 2,5 мм с толщиной стенки 0,3 мм/, которая заканчивается грузопоршневым манометром /1/. Для того чтобы масло из манометра /1/ не попадало в магистраль и образец, был изготовлен сильфонный затвор /3/, внутренняя полость которого заполняется маслом из МП-600, а наружняя - исследуемой жидкостью. Для заполнения магистрали и контейнера образца жидкостью используется специальное устройство /5/.

Создаваемое с помощью МП-600 давление масла через сильфон передается исследуемой жидкости и измеряется двумя образцовыми манометрами M0 /2; 6 на рис.1/ класса точности 0,15. Кроме того, в магистральный трубопровод вмонтирован электроконтактный /аварийный/ манометр /ЭКМ/, сигнальная лампочка которого выведена на пульт дистанционного управления. Использование грузовой колонки манометра МП-600 позволяет отслеживать изменение давления в образце под влиянием суточного изменения внешних условий и поддерживать давление с точностью ~ 0,1%.

С помощью описываемой установки можно получать информацию о молекулярной динамике жидкостей в широком интервале изменения температур /вплоть до 450°С/ и давлений /до 300 атм./ как на уровне ДДС рассеяния, так и в виде производных по давлению и температуре от закона рассеяния: dS(Q, $\hbar\omega$)/dp; dS(Q, $\hbar\omega$)/dT, которые связаны с тройной корреляционной функцией/ $^{16-20}$.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА

Спектры рассеянных нейтронов были преобразованы в абсолютные ДДС рассеяния. При этом учитывались поправки на эффективность детекторов, пропускание нейтроноводов пролетной базы спектрометра. ослабление потока нейтронов образцом и рассеяние нейтронов контейнером образца. Нормированные по ванадию ДДС рассеяния $d^2\sigma/d\Omega dE$ представлены на рис.3, 4, 5 для температур 23, 130, 200°С соответственно.



Рис.4. Абсолютные дважды дифференциальные сечения для D₂O $d^2\sigma/d\Omega dE$ [$\delta/cp\cdot B$]; $\overline{h}\Omega$ [$M \stackrel{\circ}{2}B$]. $T = 130^{\circ}C$.



60

40

20

0

20 hw



6

Используя известное выражение:

$$\tilde{S}(Q, \hbar\omega) = \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \cdot \frac{4\pi}{\sigma_B} \left(\frac{E_o}{E}\right)^{\frac{1}{2}} \exp\left(\frac{E-E_o}{2kT}\right),$$

из экспериментальных ДДС был получен симметризованный закон рассеяния /или динамический структурный фактор/ $\tilde{S}(Q, \hbar\omega)$. Здесь E_{o} , Е - начальная и конечная энергии нейтронов, σ_{B} - сечение рассеяния на связанном ядре, k - постоянная Больцмана, T - абсолютная температура, Ω - телесный угол.

На рис.6 закон рассеяния $\tilde{S}(Q, \hbar \omega)$ представлен как функция передачи волнового вектора Q при постоянной передаче энергии $\hbar \omega$. Здесь линии, соединяющие экспериментальные точки, проведены для удобства и пронумерованы. Каждая из них /от 1 до 16/ соответствует определенной передаче энергии, что отражено рядом в таблице.



Наблюдаемые положения основных максимумов и минимумов кривых хорошо коррелируют со структурным фактором S(Q) для D₀O. Однако при значениях ћω ≈ 15 мэВ поведение Š(Q, ћω) становится аномальным, что проявляется в нерегулярности изменения формы кривой.

Закон рассеяния $\tilde{S}(0, \hbar\omega)$ как функция передачи энергии ћω при постоянном значении Q, полученный интерполяцией кривых рис.6, изображен на рис.7. Здесь, как и в предыдущем случае, сплошные линии проведены для удобства. Видно, что в области Q \leq 6 A^{-1} для всех исследованных температур зависимость Š(Q, ћω) от ћω является практит чески гладкой и монотонно убывающей. Однако начиная с Q ≈ $\approx 6 A^{-1}$ на всех кривых в той или иной степени проявляются некоторые особенности в виде пика _

Рис.7. Закон рассеяния $\tilde{S}(Q, fi\omega)[M9B^{-1}]$ как функция $fi\omega$ [M9B] для различных значений $Q[A^{-1}]$: $a - 23^{\circ}$ C; $6 - 130^{\circ}$ C; в - 200°C. или плеча /см.рис.7а и 7б для температур 23°С и 130°С соответственно/.Подобные аномалии наблюдаются и при температуре 200°С / рис.7в/, но проявляются они при значениях Q > 8 ${\rm \AA}^{-1}$.

Обоснованная физическая интерпретация особенностей поведения $\tilde{S}(Q, h_{\omega})_{h_{\omega}=const}$ и $\tilde{S}(Q, h_{\omega})_{Q=const}$ требует детального анализа полученных результатов. Стоит, однако, отметить, что причиной такого поведения кривых на рис.6 и 7 может оказаться проявление эффектов коллективных мод в жидкой D₂0.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Polo J.A., Egelstaff P.A. Phys.Rev., 1983, A27, p.1508.
- 2. Egelstaff P.A., Root J.H. Chem. Phys.Lett., 1982, 91, p.96.
- 3. Råpeanu S. et al. Rev.Roum.Phys., 1986, 31, p.413.
- 4. Bosio L., Chen S.H., Teixeira J. Phys.Rev., 1983, A27, p.1468.
- 5. Page D.I., Powles J.G. Mol. Phys., 1971, 21, p.901.
- 6. Kimura N., Yoneda Y. Phys.Lett., 1982, 92A, p.297.
- 7. Blankenhagen P. Ber.Bunsenges Phys.Chem., 1972, 76, p.891.
- 8. Chen S.H., Teixeira J. Phys.Rev., 1982, A26, p.3477.
- 9. Лисичкин Ю.В., Новиков А.Г., Фомичев Н.К. Журн.физ.химии, 1985, LIX, с.1671.
- 10. Новиков А.Г. и др. Препринт ФЭИ-1548, Обнинск, 1984.
- 11. Лисичкин Ю.В. и др. Препринт ФЭИ-1366, Обнинск, 1983.
- 12. Okazaki K. et al. J.Chem.Phys., 1981, 75, p.5864.
- 13. Lie G.C., Clementi E. Phys.Rev., 1986, A33, p.2679.
- 14. Van Hove L. Phys.Rev., 1954, 95, p.249.
- 15. Пэдуреану И. и др. ОИЯИ, Р14-84-498, Дубна, 1984.
- 16. Egelstaff P.A. Ann.Rev.Phys.Chem., 1973, 24, p.159.
- 17. Egelstaff P.A., Page D.I., Heard C.R.T. J.Phys.C.: Solid St.Phys., 1971, 4, p.1453.
- 18. Egelstaff P.A. Inel.Neutr.Scatt.Proc. of Symp., IAEA, Vienna, 1972, p.383.
- 19. Hawkins R.K., Egelstaff P.A. Mol.Phys., 1975, 29, No.6, p.1639.
- 20. Chen S.H. et al. Mol. Motions in Liquids, 1974, p.507.
- 21. Harling O. Nucl.Sci. and Eng., 1968, 33, p.41.
- 22. Whittemore W. Nucl.Sci. and Eng., 1968, 33, p.195.
- Хейвуд Б., Пейдж Д. Спектры медленных нейтронов. М.: Атомиздат, 1971, с.74.
- 24. Page D., Haywood B. AERE-R5778, 1968.
- 25. Рассеяние тепловых нейтронов /под ред. П.Игелстаффа/. М.: Атомиздат, 1970.

- 26. Bondarenko I.I. et al. Inel.Neutron Scatt.Proc.of Symp. IAEA, Vienna, 1963, 1, p.127.
- 27. Лифоров В.Г. и др. Препринт ФЭИ-129, Обнинск, 1968.
- 28. Глазков Ю.Ю. и др. Препринт ФЭИ-1347, Обнинск, 1982.

НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги,

если они не были заказаны ранее.

	Д2-82-568	Труды совещания по исследованиям в области релятивистской ядерной физики. Дубна, 1982.	tр. 75 к.
	Д9-82-664	Труды совещания по коллективным методам ускорения. Дубна, 1982.	3 p. 30 ĸ.
	ДЗ,4-82-704	Труды IV Международной школы по нейтронной физике. Дубна, 1982.	5 p. 00 ĸ.
} 	Д11-83 -511	Труды совещания по системам и методам аналитических вычислений на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1982.	2 р. 50 к.
	Д7-83-644	Труды Международной школы-семинара по физике тяжёлых ионов. Алушта, 1983.	р. 55 к.
	A2,13-83-689	Труды рабочего совещания по проблемам излучения и детектирования гравитационных волн. Дубна, 1983.	2 р. 00 к.
	Д13-84-63	Труды XI Международного симпозиума по ядерной электронике. Братислава, Чехословакия, 1983.	4 р. 50 к.
F	Д2-84-366	Труды 7 Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1984.	4 р. 30 к.
,	д1,2-84-599	Труды VII Международного семинара по проблемам Физики высоких энергий. Дубна, 1984.	5 р. 50 к.
,	∿ Д17-84-85 0	Труды Ш Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна,1984. /2 тома/	7 p. 75 ĸ.
	Д10,11-84-818	Труды V Международного совещания по про- блемам математического моделирования, про- граммированию и математическим методам реше- ния физических задач. Дубна, 1983	3 р. 50 к.
		Труды IX Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1984 /2 тома/	13 p.50 ĸ.
	Д ⁴ -85-851	Труды Международной школы по структуре ядра, Алушта, 1985.	3 р. 75 к.
;	Д11-85-791	Труды Международного совещания по аналитическим вычислениям на ЭВМ и их применению в теоретиче- ской физике. Дубна,1985.	чр.
	Д13-85-793	Труды .XП Международного симпозиума по ядерной электронике. Дубна 1985.	4 р. 80 к.
	Зака	азы на упомянутые книги могут быть направлены по	адресу:

101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79 Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований

1

٠

ł

·, ·

Рукопись поступила в издательский отдел 23 декабря 1986 года.

ТЕМАТИЧЕСКИЕ КАТЕГОРИИ ПУБЛИКАЦИЙ ОБЪЕДИНЕННОГО ИНСТИТУТА ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

	Индекс	Тематика	
	1.	Экспериментальная физика высоких энерсий	
	2.	Теоретическая физика высоких энергий	
	3.	Экспериментальная нейтронная физика	
	4.	Теоретическая физика низких энергий	
	5.	Математика	
I	6.	Ядерная спектроскопия и радиохимия	
	7.	Физика тяжелых ионов	
	8.	Криогеника	
	9.	Ускорители	
	10.	Автоматизация обработки экспериментальных данных	
l	11.	Вычислительная математика и техника	
l	12.	Химия	
	13.	Техника физического эксперимента	
	14.	Исследования твердых тел и жидкостей ядерными методами	
	15.	Экспериментальная физика ядерных реакций при низких энергиях	
	16.	Дозиметрия и физика защиты	
	17.	Теория конденсированного состояния	
	18.	Использование результатов и методов фундаментальных физических исследований в смежных областях науки и техники	

19. Биофизика

Лисичкин Ю.В. и др. Рассеяние медленных нейтронов тяжелой водой в интервале температур /23-200/⁰С

Представлены результаты исследования тяжелой воды при температурах 23; 130; 200⁰С методом неупругого рассеяния медленных нейтронов. Описана установка для нейтронных исследований молекулярной динамики жидкостей в широком интервале изменения темпе ратур и давлений. Абсолютные экспериментальные дважды диффереициальные сечения рассеяния медленных нейтронов тяжелой водой преобразованы в закон рассеяния при постоянной передаче энергии hw и постоянной передаче волнового вектора Q. Замечено аномальное поведение кривых закона рассеяния.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1986

Перевод О.С.Виноградовой

Lisichkin Yu.V. et al. Slow Neutron Scattering by Heavy Water in the (23-200)°C Temperature Range P3-86-779

The result on heavy water investigation at 23; 130; 200° C temperatures using inelastic scattering method are presented. The experimental equipment for neutron investigations of molecular dynamics of liquids in a wide range of temperature and pressure variation is described. Experimental double-differential cross sections of the slow neutron scattering by heavy water are transformed into the scattering law at $\hbar\omega$ = const and Q = const. The anomalous behaviour of the scattering law curves are noticed.

The investigation has been performed at the Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1986

P3-86-779