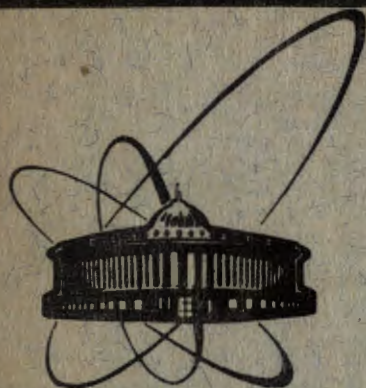


89-705



сообщения  
объединенного  
института  
ядерных  
исследований  
дубна

X 7M

P3-89-705  $e^+$

К. Холдерна-Матушкевич, С. Хабрыло, И. Натканец,  
Я. Майер, С. И. Брагин, В. Иваньски

НЕЙТРОННЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ПЕРЕХОДОВ  
ЖИДКОСТЬ - ПЛАСТИЧЕСКАЯ -  
УПОРЯДОЧЕННАЯ ФАЗА В  $CSi_4$

1989

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Примененное в экспериментах по рассеянию нейтронов высокое давление дает качественно новые возможности исследования изменений как структуры, так и динамики веществ. Исходя из этого была создана установка для получения высокого давления<sup>1/1</sup> на спектрометре КДСОГ-М<sup>1/1/</sup>, который позволяет одновременно измерять спектры дифракции (ДН) и неупругого рассеяния нейтронов (НРН).

В качестве модельного образца для тестовых измерений был выбран классический молекулярный кристалл — тетрахлорид углерода  $\text{CCl}_4$ , который имеет ряд кристаллических фаз. Фазовая P-T диаграмма  $\text{CCl}_4$  впервые изучалась Бриджменом<sup>2/1</sup>, она представлена на рис. 1. В этой и в последующих рентгеноструктурных работах были выявлены четыре твердые фазы, существующие при комнатной температуре в следующих интервалах давлений (в МПа): I —  $130 < p < 330$ , II —  $130 < p < 650$ , III —  $650 < p < 1200$  и IV при  $p < 1200$ <sup>3, 8, 10/</sup>. При атмосферном давлении  $\text{CCl}_4$  замерзает при температуре 250 К, переходя в фазу I; переход в фазу II происходит при 225 К, а переход в фазы III и IV не наблюдался. Фаза I является ориентационно-разупорядоченной (пластической), фазы II — IV — упорядоченные. Интересно подчеркнуть, что в пластической фазе  $\text{CCl}_4$  может принять кубическую (Ia) или ромбоэдрическую (Iб) структуру. Кубическая модификация является метастабильной. Упорядоченные фазы II, III и IV  $\text{CCl}_4$  описываются соответственно моноклинной C2/c, моноклинной P2<sub>1</sub>/c и, возможно, кубической Pa3 пространственными группами<sup>7-10, 17, 19-22/</sup>.

В настоящей работе приведены результаты нейтронных исследований для I и II кристаллических фаз  $\text{CCl}_4$ , полученных как путем повышения давления (при комнатной температуре), так и при понижении температуры (при нормальном давлении).

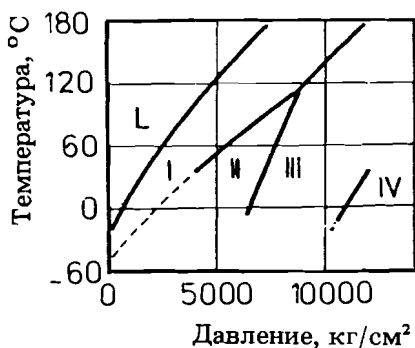


Рис. 1. Фазовая диаграмма  $\text{CCl}_4$ <sup>2/2, 12, 13/</sup>.

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТ

Все измерения проводились на коммерческом тетра氯化 углерода (ч.д.а.). В экспериментах образец заливался в цилиндрический рабочий объем камеры высокого давления (высота 100 мм, диаметр 16 мм) и с помощью газовой гелиевой системы гидростатично сжимался до 370 МПа. В экспериментах при переменной температуре образец находился в алюминиевой кассете размером 120x160x3 мм, помещенной в криостат с регулируемой температурой в пределах от комнатной до 100 К. Спектры дифракции и неупругого рассеяния нейтронов измерялись одновременно на спектрометре обратной геометрии КДСОГ-М<sup>111</sup> на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ. Углы рассеяния составляли в случае дифракции  $2\theta = 30^\circ, 50^\circ, 70^\circ$  и  $90^\circ$ , а в случае неупругого рассеяния  $2\theta = 80^\circ, 100^\circ, 120^\circ$  и  $110^\circ$ .

Спектры ДН нормировались на одинаковое число отсчетов монитора и на спектр нейтронов, падающих на образец. Спектры НРН после вычитания фона, образованного пустой кассетой, для улучшения статистики суммировались по четырем углам рассеяния.

## 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

Спектры ДН от образца  $\text{CCl}_4$ , полученные при комнатной температуре и разных гидростатических давлениях, представлены на рис. 2. Как видно из рисунка, при повышении давления наблюдается изменение спектра, вызванное переходом из жидкости в пластическую фазу I, а далее — в упорядоченную фазу II. При понижении давления наблюдались обратные переходы. Надо подчеркнуть, что дифракционные спектры при давлении 200 МПа не зависят от того, была ли фаза I получена из жидкости или из фазы II. Все наблюдаемые в этих спектрах дифракционные рефлексы можно описать в тригональной (ромбоэдрической) системе с 21 молекулой в элементарной ячейке, предложенной впервые для стабильной модификации фазы I Рудманом<sup>11-6</sup>. В табл.1 приведены параметры элементарной ячейки в зависимости от давления, полученные с помощью подгонки к экспериментальным данным по методу наименьших квадратов (МНК).

Все наблюдаемые рефлексы в дифракционном спектре перемещались в направлении меньших межплоскостных расстояний при увеличении давления. На этой основе был рассчитан изотропный коэффициент сжимаемости  $\text{CCl}_4$  в фазе I,  $\mathcal{K} = -1,1 \cdot 10^{-10} \text{ Па}^{-1}$ , сравнимый по величине с коэффициентом сжимаемости<sup>10-12</sup> для других пластических кристаллов. Все наблюдаемые в спектрах фазы II рефлексы индициру-

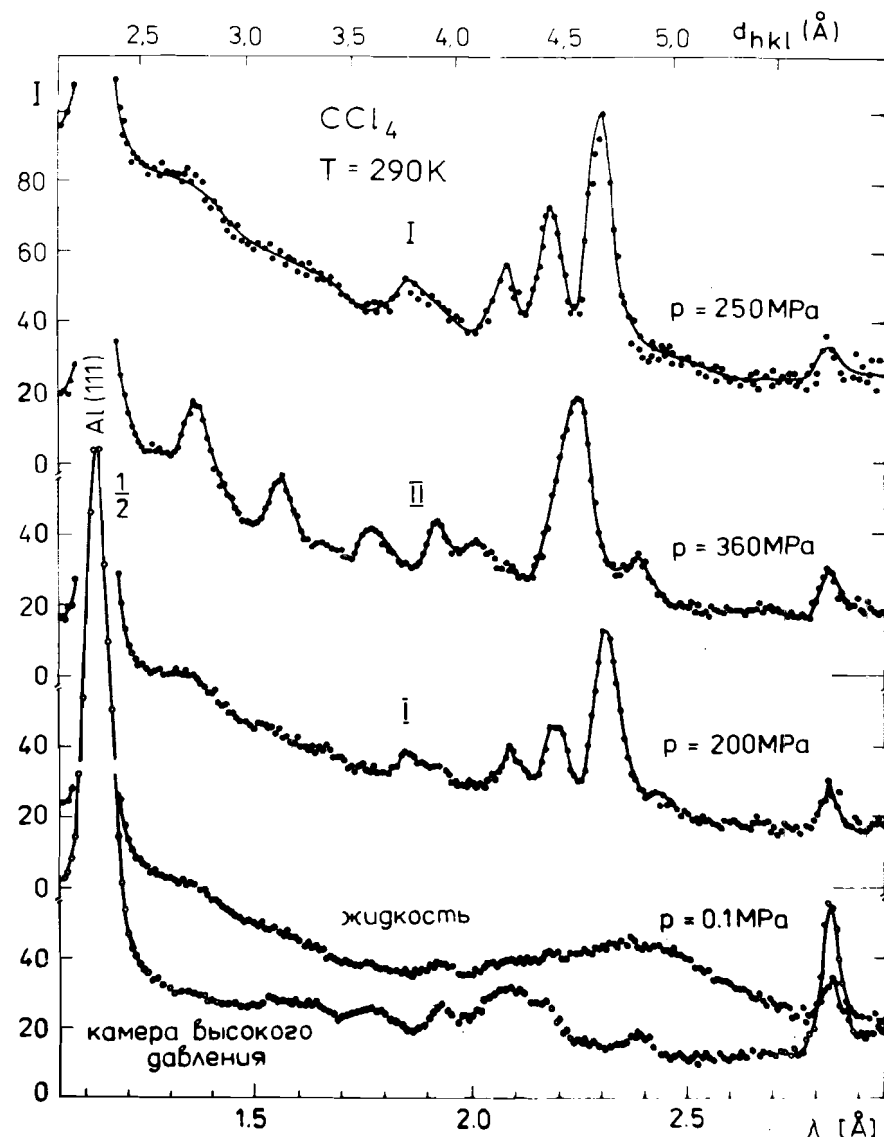


Рис. 2. Спектры дифракции нейтронов в камере с образцом при разных гидростатических давлениях (I — интенсивность рассеяния нейтронов, нормированная на спектр нейтронов, падающих на образец).

Таблица 1. Влияние гидростатического давления на параметры ромбоэдрической ячейки  $\text{CCl}_4$  при комнатной температуре

P (МПа)	a=b=c (Å)	$\alpha=\beta=\gamma$
150	14,36 ± 0,02	90°
200	14,31 ± 0,02	90°
250	14,26 ± 0,02	90°

ются в рамках моноклинной системы, предложенной для этой фазы в работе<sup>13/</sup>.

Во многих работах по  $\text{CCl}_4$  при замерзании образца отмечается существование неустойчивой кубической гранцентрированной ( $a = 8,34 \text{ \AA}$ ,  $z = 4$ ) модификации. Детальные исследования замерзания и плавления  $\text{CCl}_4$  в зависимости от давления и температуры, проведенные в работе<sup>118/</sup>, показали, что эта модификация существует в очень узком диапазоне температур (примерно  $5^\circ$ ) при переохлаждении жидкости ниже точки плавления стабильной модификации. В наших экспериментах не удалось добиться переохлаждения жидкости, и температура замораживания, фиксируемая по появлению дифракционных рефлексов твердой фазы, хорошо согласуется с известной температурой плавления. На рис. 3 представлены спектры ДН, полученные при замораживании образца (температура 250 К), с интервалом времени 30 мин. В спектре жидкости хорошо выделяется пик при  $d_{hkl} = 4,7 \text{ \AA}$ , который определяет среднее межмолекулярное расстояние в первой координационной сфере. В образующейся фазе I  $\text{CCl}_4$  мы наблюдали больше рефлексов, чем можно было ожидать, учитывая кубическую симметрию элементарной ячейки.

В зависимости от условий эксперимента были получены разные дифракционные спектры фазы I, что иллюстрируют рис. 4 и 5. Спектры ДН фазы I, полученной при быстром замораживании (рис. 2 и рис. 4б, кривая 2), почти идентичны со спектрами этой фазы, полученной из фазы II (см. рис.2, рис.4а, кривая 1, рис. 5г), тогда как спектры ДН, полученные при медленном охлаждении жидкости, существенно отличаются друг от друга (рис. 5а,б,в). Таким образом, надо принять, что разновидность спектров, полученных нами для фазы I, вызвана образованием текстуры в процессе отвердевания<sup>123-26/</sup>.

Чтобы установить, отвечают ли полученные в этом опыте разные дифрактограммы различным кристаллографическим фазам, предпринята попытка проиндексировать их в кубической, тетрагональной и ром-

Рис. 3. Нейтронограмма  $\text{CCl}_4$  при 250 К. 1 — жидкость, 2 — замораживание, 3 — пластическая фаза.

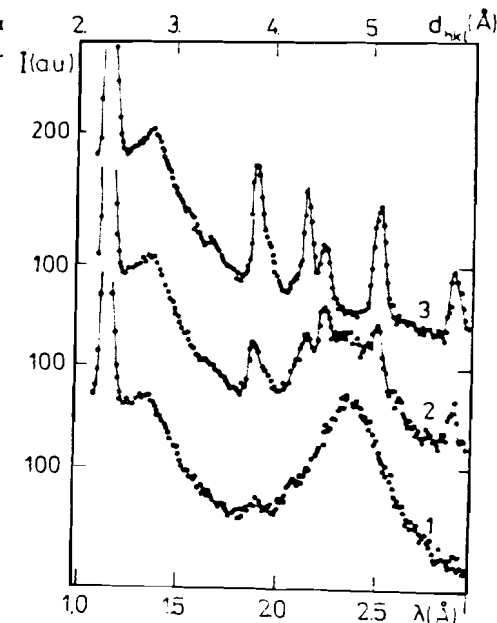
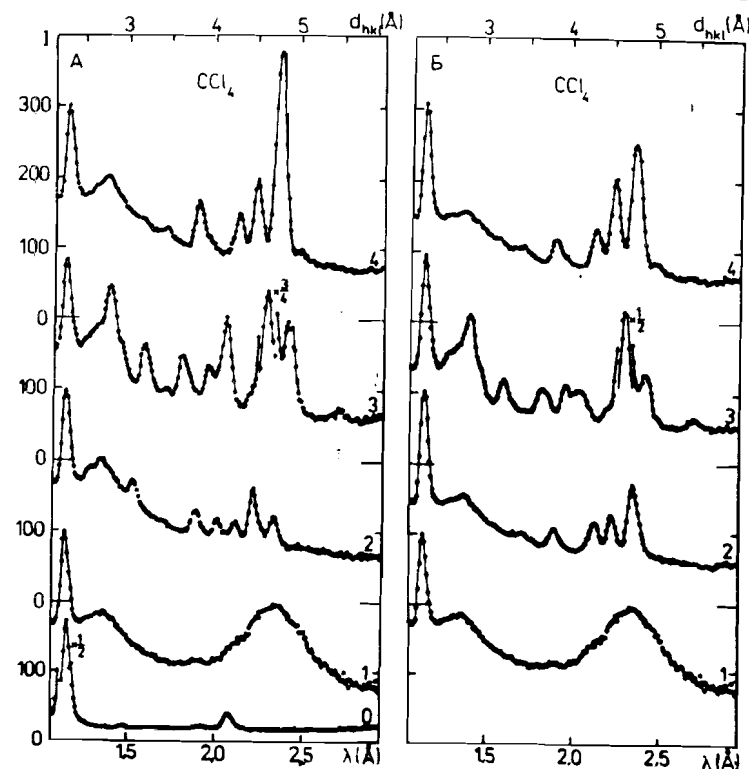


Рис. 4. Спектры дифракции нейтронов: 1 — жидкости, 2 — фазы I, полученной из жидкости, 3 — фазы II, полученной из пластической фазы, 4 — фазы I, полученной из фазы II, 0 — фон от криостата, полученный при разных скоростях охлаждения образца (а —  $1^\circ/30 \text{ мин}$ , б —  $1^\circ/3 \text{ мин}$ ).



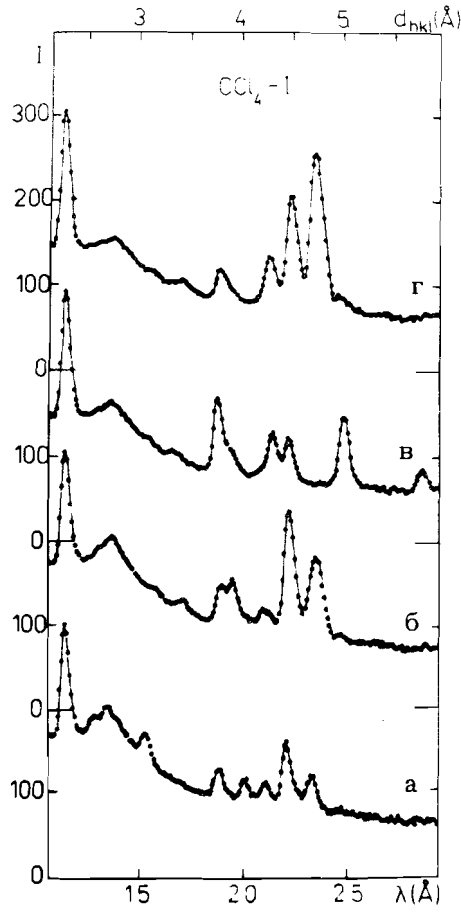


Рис. 5. Нейтронограммы текстурированной пластической фазы  $\text{CCl}_4$  (угол рассеяния  $2\theta = 30^\circ$ ), а, б, в — спектры ДН, полученные при медленном ( $1^\circ/30$  мин) замораживании жидкости, г — спектр ДН пластической фазы, полученной из фазы II.

боздрических системах. В результате оказалось, что ни одну из дифрактограмм фазы I не удалось полностью объяснить в рамках кубической симметрии. В табл. 2 приведены межплоскостные расстояния, вычисленные для ромбоэдрической, кубической и двух вариантов тетрагональной симметрии, и полученные экспериментальные данные. Совокупность всех наблюдаемых в разных дифрактограммах рефлексов составляет набор, соответствующий при наименьшем  $\chi^2$  ромбоэдрической элементарной ячейке с параметрами  $a = (14,30 \pm \pm 0,02)$  Å,  $\alpha = 90^\circ$  при  $T = 230$  К (постоянная решетки ромбоэдрической элементарной ячейки приблизительно равна  $\sqrt{3} a_{\text{fcc}}$ , что

отвечает пространственной диагонали куба). Некоторые сомнения вызывает рефлекс, наблюдаемый в диапазоне межплоскостных расстояний (4,35; 4,55) Å, полуширина которого больше, чем у остальных рефлексов. В одном из спектров ДН он явно расщепляется на два рефлекса, положения которых приведены в табл. 2. В рамках ромбоэдрической симметрии выяснение такого поведения затруднено. Группа рефлексов, отвечающая расстояниям (4,10; 4,55) Å, лучше описывается в тетрагональной системе  $a_t = b_t = 11,745$  Å,  $c_t = 17,121$  Å с 16 молекулами в элементарной ячейке. Постоянные решетки в тетрагональной системе имеют следующие соотношения:  $a_t = b_t = \sqrt{2} a_{\text{fcc}}$ ,  $c_t = n a_{\text{fcc}}$ ,  $n = 1, 2$ , относительно кубической гранцентрированной ячейки.

Спектры фазы II показаны на рис. 4 а,б, кривая 3. Незначительная разница интенсивностей рефлексов, наблюдаемая в этих спектрах, вы-

Таблица 2. Сравнение межплоскостных расстояний, полученных экспериментально, с вычисленными, учитывающими разную симметрию элементарной ячейки

$d_{hkl}$ (Å)	Ромбоэдрическая $a=b=c=14,37$ Å $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ $\chi^2=3,44$ ; $R=0,3675$	ГЦ кубическая $a=b=c=8,299$ Å $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$	Тетрагональная (I) $a=b=11,69$ Å, $c=8,30$ Å $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ $\chi^2=79,42$ ; $R=1,6994$	Тетрагональная (II) $a=b=11,745$ Å, $c=17,121$ Å $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ $\chi^2=49,20$ ; $R=1,0469$
$5,87 \pm 0,05$	(2II)	(110)	{(111)} {(200)}	(200)
$5,04 \pm 0,05$	(220)			(211)
$4,80 \pm 0,05$	{(221)} {(300)}	(111)	(201)	(202)
$4,55 \pm 0,05$	(310)		(211)	(113)
$4,38 \pm 0,05$	(311)			(212)
$4,30 \pm 0,05$	(222)	(200)		(004)
$4,10 \pm 0,05$	(320)		(220)	{(220)} {(203)}
$3,99 \pm 0,05$	(321)	(210)	(102)	(300)
$3,84 \pm 0,05$	(341)		(300)	{(213)} {(301)}
$3,49 \pm 0,05$	{(322)} {(410)} {(421)}		(301)	{(204)} {(300)}
$3,18 \pm 0,05$	(316)	(220)	{(321)} {(222)} {(410)}	(115)
$2,92 \pm 0,05$	(2934)		{(003)} {(312)}	{(322)} {(400)} {(323)} {(411)} {(300)}
$2,82 \pm 0,05$	(2819)		(2766)	(3150)
$2,77 \pm 0,05$	(2766)	(221)	(2753)	(3049)
$2,46 \pm 0,05$	(2465)	(311)	{(421)} {(213)}	(2830)
				(2816)
				(2775)
				(2493)
				(2431)

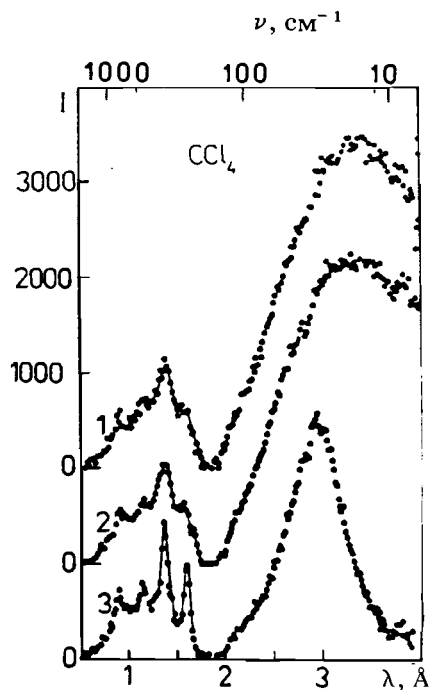


Рис. 6. Времяпролетные спектры НРН для  $\text{CCl}_4$  в: 1 — жидкой, при 270 К, 2 — пластической, при 230 К, 3 — кристаллической фазе при 110 К. По вертикальной оси — интенсивность в относительных единицах.

звана разным текстурированием образцов фазы I. Полученные нами параметры элементарной моноклинной ячейки при 225 К:  $a = (20,35 \pm 0,09) \text{ \AA}$ ,  $b = (11,05 \pm 0,02) \text{ \AA}$ ,  $c = (19,92 \pm 0,05) \text{ \AA}$ ,  $\beta = 110^\circ$ , хорошо совпадают с данными работ<sup>13, 4, 11</sup>.

То, что  $\text{CCl}_4$  легко образует отдельные крупные монокристаллические блоки, хорошо известно<sup>14-16</sup>. По-видимому, такие образцы были получены при медленном затвердевании  $\text{CCl}_4$ , и это является причиной существенного различия интенсивности дифракционных рефлексов, представленных на рис. 5а,б,в. Однако при быст-

ром охлаждении, затвердевании под давлением или переходе из фазы II мы получили похожие друг на друга дифрактограммы в пластической фазе. Они представлены на рис. 4а,б и рис. 5. В этих спектрах максимальную интенсивность имеет рефлекс с  $d_{hkl} = (4,80 \pm 0,05) \text{ \AA}$ , который можно проиндексировать как (111) в рамках кубической гранцентрированной ячейки. На плоскости [111] ГЦК ячейки лежат атомы углерода молекул  $\text{CCl}_4$ . Следующие два рефлекса при 4,55 и 4,30 Å, которые невозможно проиндексировать в рамках кубической симметрии, свидетельствуют о несоответствии стабильной структуры пластической фазы метастабильной кубической модификации. Значительное уменьшение интенсивностей рефлексов с более высокими индексами (hkl) можно связать с быстрой реориентацией молекул в пластической фазе.

Как было показано выше, одновременно с измерениями ДН проводились измерения неупругого рассеяния нейтронов. На рис. 6 представлены спектры НРН для жидкости, ориентационно-разупорядоченной фазы I и упорядоченной фазы II. Во всех трех спектрах видна граница (приблизительно при  $130 \text{ см}^{-1}$ ), разделяющая спектр на область внешних и внутримолекулярных колебаний  $\text{CCl}_4$ . Низкоэнергетические области спектра жидкой и пластической фаз (1 и 2 на рис. 6) похожи

друг на друга. Такое поведение этой части спектра позволяет сделать вывод, что динамика фазы I почти не отличается от динамики жидкости, хотя кристаллическая структура фазы I хорошо видна в спектрах ДН. Низкочастотное поведение спектра внешних колебаний кристалла в фазе II отвечает дебаевскому распределению плотности фононных состояний  $g(\nu) \sim \nu^2$ . Это характерно для упорядоченных систем. Частоты внутримолекулярных мод 220, 320, 475, 786  $\text{см}^{-1}$ , наблюдаемые в  $\text{CCl}_4$  при 110 К, согласуются с результатами исследований, проведенных методом КР и ИС<sup>12, 7</sup>. Это свидетельствует о бездисперсионном характере этих мод.

Как видно из рис. 6, полосы, отвечающие внутримолекулярным колебаниям в жидкости и фазе I, значительно шире, чем в фазе II, что, по-видимому, вызвано быстрой реориентацией молекул в этих фазах. С понижением температуры частоты внутримолекулярных колебаний не изменяются, что свидетельствует о независимости внутри- и междумолекулярных взаимодействий. Более подробная информация о ротационном движении молекул  $\text{CCl}_4$  в пластической фазе требует проведения детальных измерений квазиупругого рассеяния нейтронов.

## ВЫВОДЫ

1. Разупорядоченная фаза I в  $\text{CCl}_4$  в условиях наших экспериментов образовалась сразу в стабильной, не кубической модификации.
2. Фаза I, полученная при медленном охлаждении, характеризуется сильной текстурой.
3. Нейтронограммы фазы II хорошо описываются в рамках известной из литературы моноклинной симметрии.
4. Молекулярные динамики фазы I и жидкости похожи друг на друга.
5. Частоты внутримолекулярных и внешних колебаний разделены во всех фазах.
6. Дебаевское распределение плотности фононных состояний свидетельствует об упорядоченности молекул в фазе II.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Хабрыло С. и др. — Препринт ОИЯИ РЗ-88-315, Дубна, 1988.
2. Bridgman P.W. — Phys. Rev., 1914, 3, p.153.
3. Timmermans J. — J. Phys. Chem. Solids, 1961, 18, p.1.
4. Rudman E., Post B. — Science, 1966, 154, p.1009.
5. Post B. — Acta Cryst., 1959, 12, p.349.

6. Rudman R., Post B. — Mol. Cryst., 1968, 5, p.95.
7. Weier C.E., Piermanini G.J., Block S. — J. Chem. Phys., 1969, 50, p.2089.
8. Piermanini G.J., Braun A.B. — J. Chem. Phys., 1973, 58, p.1974.
9. Cohen S., Powers R., Rudman R. — Acta Cryst. B, 1979, B35, p.1670.
10. Powers R., Pudman R. — J. Chem. Phys., 1980, 72, p.1629.
11. Балунка Г. и др. — Сообщение ОИЯИ P13-84-242, Дубна, 1984.
12. Bridgman P.W. — Proc. Am. Acad. Arts. Sci., 1945, 76, p.19.
13. Bridgman P.W. — Proc. Am. Acad. Arts. Sci., 1948, 76, p.83.
14. Кабалкина С.С. — Физика твердого тела, 1962, 4, с.3124.
15. Levy-Mannheim C., Djabourov M., Leblond J. — Phys. Lett., 1974, 50A, p.75.
16. Djabourov M. et al. — J. Chem. Phys., 1977, 66, p.5748.
17. Anderson A., Torrie V.H., Tse W.S. — Chem. Phys. Lett., 1979, 61, p.119.
18. Bean V.E., Wood S.D. — J. Chem. Phys., 1980, 72, p.5838.
19. Kohji K., Nishikawa K., Murata Y. — Jap. Appl. Phys., 1980, 19, p.L365.
20. Tse W.S., Liu S.J. — Chin. J. Phys., 1987, 25, p.4.
21. Алиханов П.А. и др. — Препринт ОИЯИ P14-86-594, Дубна, 1986.
22. Смирнов П.С. и др. — ИТЭФ. М.: ЦНИИатоминформ, 1987.
23. Granada J.R. et al. — Mol. Phys., 1979, 37, p.1297.
24. Morison J.A., Richards E.L. — J. Chem. Thermod., 1976, 8, p.1033.
25. Dumas J.P. — J. Phys., 1976, L143.
26. Badiali L.-P., Bruneaux-Pouille J., Defrain A. — J. Chem. Phys., 1976, 73, p.113.
27. Herzberg G. — Molecular Spectra and Molecular Structure I., Spectra of Diatomic Molecules. D. Van Nostrana, 1946.

#### НЕТ ЛИ ПРОБЕЛОВ В ВАШЕЙ БИБЛИОТЕКЕ?

Вы можете получить по почте перечисленные ниже книги, если они не были заказаны ранее.

Д13-84-63	Труды XI Международного симпозиума по ядерной электронике. Братислава, Чехословакия, 1983.	4 р. 50 к.
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.
Д17-84-850	Труды III Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1984. (2 тома)	7 р. 75 к.
Д11-85-791	Труды Международного совещания по аналитическим вычислениям на ЭВМ и их применению в теоретической физике. Дубна, 1985.	4 р. 00 к.
Д13-85-793	Труды XII Международного симпозиума по ядерной электронике. Дубна, 1985.	4 р. 80 к.
Д4-85-851	Труды Международной школы по структуре ядра Алушта, 1985.	3 р. 75 к.
Д3,4,17-86-747	Труды V Международной школы по нейтронной физике Алушта, 1986.	4 р. 50 к.
—	Труды IX Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1984. (2 тома)	13 р. 50 к.
Д1,2-86-668	Труды VIII Международного семинара по проблемам физики высоких энергий. Дубна, 1986. (2 тома)	7 р. 35 к.
Д9-87-105	Труды X Всесоюзного совещания по ускорителям заряженных частиц. Дубна, 1986. (2 тома)	13 р. 45 к.
Д7-87-68	Труды Международной школы-семинара по физике тяжелых ионов. Дубна, 1986.	7 р. 10 к.
Д2-87-123	Труды Совещания "Ренормгруппа - 86". Дубна, 1986.	4 р. 45 к.
Д4-87-692	Труды Международного совещания по теории малочастичных и кварк-адронных систем. Дубна, 1987.	4 р. 30 к.
Д2-87-798	Труды VIII Международного совещания по проблемам квантовой теории поля. Алушта, 1987.	3 р. 55 к.
Д14-87-799	Труды II Международного симпозиума по проблемам взаимодействия мюонов и пионов с веществом. Дубна, 1987.	4 р. 20 к.
Д17-88-95	Труды IV Международного симпозиума по избранным проблемам статистической механики. Дубна, 1987.	5 р. 20 к.

Рукопись поступила в издательский отдел  
9 октября 1989 года.



Д14-88-833	Труды рабочего совещания "Современные направления в активационном анализе ОИЯИ". Дубна, 1988	2 р. 40 к.
Д13-88-938	Труды XIII Международного симпозиума по ядерной электронике. Варна, 1988	4 р. 30 к.
Д10-89-70	Труды Международной школы по вопросам применения ЭВМ в физических исследованиях. Дубна, 1988.	2 р. 60 к.
Р2-89-138	Труды семинара "Гравитационная энергия и гравитационные волны". Дубна, 1988	1 р. 10 к.
Д19-89-143	Труды рабочего совещания по генетическому действию корпускулярных излучений. Дубна, 1988	4 р. 30 к.
Д4-89-221	Труды рабочего совещания по разработке и созданию излучателя и детектора гравитационных волн. Дубна, 1988	1 р. 60 к.

Заказы на упомянутые книги могут быть направлены по адресу: 101000 Москва, Главпочтамт, п/я 79. Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований.

Холдерна-Матушкевич К. и др.  
Нейтронные исследования переходов  
жидкость — пластическая — упорядоченная фаза в  $\text{CCl}_4$ .

P3-89-705

Сообщаются результаты исследований дифракционных спектров  $\text{CCl}_4$  для ориентированно-разупорядоченной (I) и упорядоченной (II) фаз, полученных как путем повышения давления при комнатной температуре, так и в результате понижения температуры при атмосферном давлении. Для описания структуры пластической фазы I рассмотрены разные симметрии элементарной ячейки. Приводятся также спектры ННРН и их обсуждения.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна 1989

Перевод Т.А.Филимонычевой

Holderna-Matuszkiewicz K. et al.  
Neutron Studies of the Liquid — Plastic Phase — Ordered Phase  
Transitions in  $\text{CCl}_4$

P3-89-705

The results of studies on the  $\text{CCl}_4$  diffraction spectra for the disordered phase (I) and the ordered one (II) are given. On the one hand, these results are obtained as the pressure increases at room temperature and on the other, as the temperature decreases at atmospheric pressure. To describe the structure of plastic phase I various symmetries of an elementary unit are examined. The under discussion IINS spectra are also presented.

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

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 1989