

99929

Л В Э

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

На правах рукописи

УДК 539.2

C-136

САВОСТИН Вадим Валентинович

**Атомная динамика жидкого калия
из анализа данных по рассеянию
медленных нейтронов**

01.04.07 — физика твердого тела

*Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук*

Дубна — 1997

Работа выполнена в Государственном научном центре Российской Федерации — Физико-энергетическом институте имени академика А. И. Лейпунского, г. Обнинск.

Научный руководитель:

- ◆ Доктор физико-математических наук А. Г. Новиков

Официальные оппоненты:

- ◆ Доктор физико-математических наук, профессор Л. А. Булавин
- ◆ Доктор физико-математических наук, профессор В. Б. Приезhev

Ведущая организация:

Объединенный институт высоких температур РАН,
г. Москва.

Защита состоится « . . . » 1997 г. в . . . час. . . . мин. на заседании диссертационного совета Д 047.01.05 при Лаборатории нейтронной физики им. И. М. Франка и Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова Объединенного института ядерных исследований (141980, г. Дубна, Московская область).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ОИЯИ.

Автореферат разослан « . . . » 1997 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
кандидат физ.-мат. наук

А. Г. Полеко

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования. Расплавы щелочных металлов уже в течении многих лет вызывают устойчивый интерес исследователей. В настоящее время наиболее полно изучена атомная динамика таких щелочных металлов, как рубидий, натрий, цезий, литий, но фактически не исследован калий. Вместе с тем физические свойства жидкого калия на микроуровне представляют несомненный интерес, в основе которого лежат и чисто научные, и практические причины. Актуальность работы обусловлена следующими обстоятельствами:

Во-первых, расплав калия представляет собой пример простой жидкости, что расширяет возможности экспериментального изучения физики жидкого состояния. Полученная качественно новая фундаментальная информация необходима для развития и проверки расчетно-теоретических методов и модельных представлений, применяемых при описании термодинамических и транспортных свойств жидкостей.

Во-вторых, щелочные металлы широко используются в качестве теплоносителей ядерных энергетических установок (ЯЭУ) и тепловых труб, что обуславливает необходимость исследования свойств и особенностей этих металлов при разработке технологии подготовки теплоносителя и очистки его от примесей. Однако традиционная технология имеет дело с макросвойствами расплавов, опираясь главным образом на феноменологический подход. Очевидно, что дальнейший прогресс и в прикладной области, и в теории жидкого состояния невозможен без детального изучения микроструктуры жидкости, движения ее атомов.

Цель работы состояла в получении систематических данных по атомной динамике жидкого калия методом неупругого рассеяния медленных нейтронов. Для этого требовалось:

1. Используя двойной времяпролетный спектрометр ДИН-2ПИ, получить абсолютные дважды-дифференциальные сечения (ДДС) рассеяния медленных нейтронов жидким калием.

2. Модернизировать программный комплекс SLOWN по обработке данных нейтронно-динамического эксперимента применительно к веществам, микросечения рассеяния которых содержат как некогерентную, так и когерентную составляющую (для калия $\sigma_{nc} = 0.27$ б, $\sigma_c = 1.69$ б [1]).

3. Из экспериментальных ДДС выделить фундаментальную характеристику вещества – спектр частот (СЧ) колебаний атомов – и проследить его температурную зависимость.

4. На основе СЧ получить ряд микродинамических характеристик жидкого металла. Осуществить переход к макроскопическим (термодинамическим) параметрам расплава.

5. Проанализировать область квазиупругого рассеяния ДДС и получить данные о механизме самодиффузии в расплаве калия.

6. На основе анализа составляющей неупругого когерентного рассеяния ДДС ответить на вопрос, существуют ли в жидком калии коллективные возбуждения, и, если существуют, оценить параметры коллективных возбуждений и характеристики релаксационных процессов в жидком калии.

Научная новизна работы.

1. Впервые экспериментально получены абсолютные ДДС рассеяния медленных нейтронов на жидком калии при температурах 340, 440, 550 К (температура плавления калия $T_{пл} = 336.7$ К).

2. Для жидкого калия впервые проведен комплексный анализ некогерентной и когерентной составляющих полного ДДС рассеяния.

3. В обозначенном интервале температур впервые получен СЧ колебаний атомов жидкого калия, который хорошо согласуется с СЧ, рассчитанным методом молекулярной динамики (МД) при 340 К, и заметно отличается от расчетного СЧ для твердого калия вблизи точки плавления.

4. На основе СЧ рассчитан ряд других микродинамических характеристик жидкого металла: автокорреляционная скоростная функция, среднеквадратичное смещение атомов как функция времени и среднеквадратичная амплитуда колебаний атомов, средняя силовая постоянная межатомного потенциала и среднеквадратичная сила, действующая на атом жидкого калия в силовом поле соседей, а также макроскопическая величина – параметр Грюнайзена.

Анализ температурных зависимостей этих величин позволяет сделать вывод о том, что в исследованном интервале температур жидкий калий является слабо “ангармонической” жидкостью.

5. Температурная зависимость СЧ описана аналитически и на ее основе определена изохорная теплоемкость расплава калия. Установлено, что при расчете теплоемкости в области температур, удаленных от точки плавления на 250–300 К, наряду с учетом ангармонических эффектов, проявляющихся в температурной деформации СЧ, необходимо принимать во внимание диффузионную подвижность атомов жидкого металла.

6. Из ДДС квазиупругого рассеяния для жидкого калия впервые получена зависимость полуширины (ширины на полувысоте) естественной линии закона некогерентного квазиупругого рассеяния (ЗНКУР) от квадрата передачи волнового вектора нейтрона, которая проанализирована в рамках ряда простейших моделей диффузии в жидкости и теории взаимодействующих мод (ТВМ).

Сделан вывод, что при температурах, не слишком близких к точке плавления (440, 550 К), процесс самодиффузии в расплаве калия имеет безактивационный характер и может быть описан с помощью ТВМ. С приближением к тройной точке (340 К) усиливается вклад активационного механизма диффузии, и в диффузионном поведении расплава появляются черты квазикристалличности.

7. Из экспериментальных ДДС выделена составляющая неупругого когерентного рассеяния и преобразована в динамический структурный фактор.

Установлено, что в расплаве калия существуют распространяющиеся коллективные моды, которые можно наблюдать экспериментально до передач волнового вектора нейтрона $Q = 1.2 - 1.25 \text{ \AA}^{-1}$, что соответствует длинам волн порядка межатомных расстояний.

Для коллективных мод жидкого калия впервые построен участок дисперсионной кривой. Показано, что средняя энергия коллективных мод уменьшается с ростом температуры.

8. Релаксационные процессы в жидком калии впервые рассмотрены с точки зрения критерия немарковости для случаев некогерентного и когерентного рассеяния медленных нейтронов: проанализировано влияние эффектов статистической памяти на релаксацию флуктуаций плотности жидкого металла. Показано, что рассеяние медленных нейтронов позволяет прямо зарегистрировать и непосредственно наблюдать немарковские релаксационные процессы в жидкости.

Практическая значимость проведенного исследования определяется возможностью применения полученных результатов в современной ядерной и тепловой энергетике, а также проблемами физики жидкого состояния.

1. Вопросам качества теплоносителей ЯЭУ и тепловых труб придается в настоящее время большое значение. В этой связи полученная фундаментальная физическая информация по атомной динамике жидкого калия может послужить научной базой для обоснования и оптимизации технологии жидкометаллических теплоносителей.

2. Сегодня совершенно очевидно, что дальнейший прогресс в области технологии теплоносителей связан с изучением тонких эффектов в многокомпонентных растворах, поведение которых в значительной степени определяется наличием примесей. Информация о динамических свойствах расплава калия на микроуровне является отправной точкой для исследования, например, такой примесной системы как калий – кислород, которая имеет важное значение с точки зрения технологии.

3. Данные о структурных и динамических свойствах расплавов щелочных металлов позволяют проверить адекватность и способствуют развитию существующих теоретических представлений физики жидкости и углублению нашего понимания особенностей жидкого состояния вещества.

Апробация работы. Основные результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на Рабочем совещании по исследованиям конденсированных сред на реакторе ИБР-2 (Дубна, 1990), на Межотраслевой конференции "Теплофизика-91" (Обнинск, 1991), на Международной школе-семинаре "Кинетическая теория процессов переноса при испарении и конденсации" (Минск, 1991), на VII Всесоюзной школе молодых ученых и специалистов "Современные проблемы теплофизики" (Новосибирск, 1992), на XI (Гатчина, 1991), XII (Екатеринбург, 1993) и XIII (Санкт-Петербург, 1995) Совещаниях по использованию рассеяния нейтронов в физике твердого тела, на семинаре Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка (ОИЯИ, Дубна, 1995), на III Конференции по жидкому состоянию (Норвич, Англия, 1996), на I Европейской конференции по рассеянию нейтронов (Интерлакен, Швейцария, 1996).

Публикации. Основное содержание диссертации опубликовано в 11 работах.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, пяти глав и заключения, содержит 126 страниц, 37 рисунков, 4 таблицы и список литературы из 122 наименований.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы исследования, сформулирована постановка задачи, приведены основные положения, выносимые на защиту, дано краткое содержание диссертации по главам.

В первой главе сделан обзор работ, посвященных экспериментальному исследованию жидких щелочных металлов методом неупругого рассеяния медленных нейтронов. Рассмотрено состояние проблемы начиная от первых работ начала шестидесятых годов и до настоящего времени. Приведены параметры экспериментов, образцов расплавов, рассмотрены использованные методы обработки, анализа и интерпретации экспериментальных данных. Отмечено полное отсутствие информации по неупругому рассеянию медленных нейтронов на жидком калии.

Во второй главе показана экспериментальная часть работы: характеристики спектрометра ДИН-2ПИ и условия проведения измерений, конструкция установки с образцом расплава. Изложена методика первичной обработки экспериментальных данных и приведены абсолютные экспериментальные ДДС рассеяния медленных нейтронов для жидкого калия.

Экспериментальная часть работы выполнена на времяпролетном нейтронном спектрометре ДИН-2ПИ в Лаборатории нейтронной физики им. И.М. Франка ОИЯИ (г. Дубна). Измерения проводились при работе реактора ИБР-2 на средней мощности 2 МВт с частотой повторения импульсов мощности 5 Гц. Рассеяние медленных нейтронов на расплаве калия измерялось при температурах 340, 440 и 550 К.

Образец, непосредственно находившийся в нейтронном пучке, являлся частью экспериментальной установки (рис. 1), которая выполнена в виде циркуляционного контура и, вообще говоря, предназначена для исследования расплава калия с примесью кислорода, но в данном случае была использована для экспериментов на чистом калии.

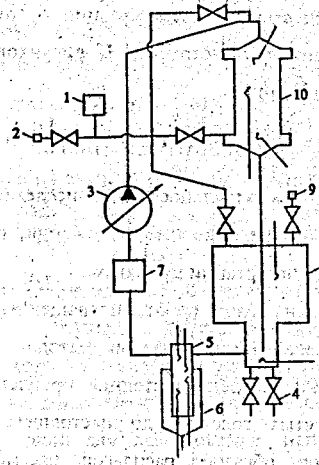


Рис. 1. Технологическая схема экспериментальной установки:

1 – мановакуумметр; 2, 9 – вакуумные разъемы; 3 – насос; 4 – вентили; 5 – холодная ловушка примесей; 6 – охладитель ловушки; 7 – расходомер; 8 – компенсационный бак; 10 – образец.

Образец представлял собой контейнер в форме цилиндра высотой 16 см и диаметром 12 см, наполненный дистиллированным калием. Контейнер был сделан комбинированным: на тонкостенный цилиндр из армко-железа (толщина стенки 0,2 мм) была плотно посажена оболочка из алюминия марки АМЦ толщиной 1 мм, выполняющая прочностные функции.

В эксперименте использовались нейтроны с низкой начальной энергией $E_0 = 4$ мэВ, что обеспечивало разрешение спектрометра $\Delta E_0 = 0,16$ мэВ (4%). Выбор начальной энергии нейтронов зависел, в частности, от физических свойств материала контейнера. При $E_0 = 4$ мэВ длина волны падающих нейтронов превышает брэгговскую границу для материалов контейнера (~5 мэВ). Это позволило в несколько раз снизить когерентное рассеяние от контейнера и существенно повысить качество получаемой информации.

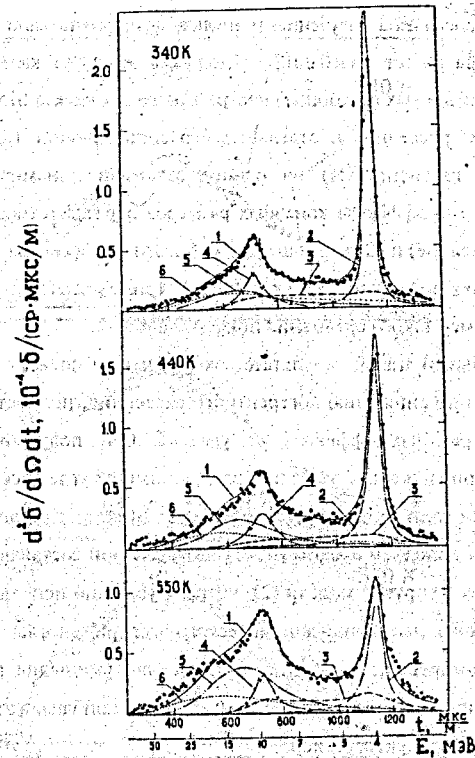


Рис. 2. ДДС рассеяния для жидкого калия. $E_0 = 4$ мэВ, угол рассеяния $2\theta^*$.

Точки – эксперимент. Расчет: 1 – полное ДДС рассеяния, 2 – некогерентная квазиупругая составляющая, 3 – некогерентная однофононная составляющая, 4 – когерентная составляющая, 5 – многофононная составляющая, 6 – составляющая многократного рассеяния.

Экспериментальные спектры рассеянных нейтронов после внесения поправок на фоновое рассеяние, ослабление потока нейтронов в образце и контейнере, рассеяние от контейнера и эффективность детекторов преобразованы в абсолютные ДДС (рис. 2) с помощью нормировки по данным измерений на падшем в образце.

Третья глава посвящена получению и анализу фундаментальной характеристики вещества – спектра частот колебаний атомов. СЧ жидкого калия выделен из экспериментальных данных с помощью программного комплекса SLOWN, который рассчитывает ДДС рассеяния и отдельные его составляющие (однофононную, многофононную, квазиупругую) на основе заданной динамической модели рассеивателя с учетом эффектов конечных размеров образца (самоэкранирование, многократное рассеяние) и разрешающей способности спектрометра. СЧ извлекается с помощью итерационной процедуры, в которой экспериментальное ДДС сравнивается с расчетным. Пример такого сравнения показан на рис. 2.

Предварительный анализ результатов эксперимента показал, что, несмотря на принятые меры по снижению когерентного рассеяния, полностью избавиться от влияния когерентных эффектов не удалось: СЧ, полученные в рамках некогерентного приближения, оказались зависящими от угла рассеяния. В связи с этим потребовался специальный учет когерентных эффектов, для чего программный комплекс SLOWN дополнен блоком расчета когерентной составляющей полного ДДС в рамках вязко-упругой модели [2], которая успешно использовалась ранее при обработке данных нейтронно-динамического эксперимента на жидком натрии [3]. Такой учет когерентных эффектов существенно уменьшил расхождения в форме СЧ, полученных для различных углов рассеяния, приблизив эти расхождения к уровню экспериментальных ошибок.

СЧ жидкого калия для трех температур показаны на рис. 3. При сравнении экспериментального СЧ, соответствующего температуре 340 К, с фоновым спектром твердого калия при 300 К [4] обращает на себя внимание тот факт, что в СЧ жидкости полностью исчезла структурированность, характерная для твердого тела. В то же время имеет место неплохое совпадение экспериментального СЧ с результатами МД-расчета [5], проведенного для жидкого калия при температуре 340 К.

Экспериментальные СЧ для всех трех температур приведены в нижней части рис. 3. Видно, что с ростом температуры имеет место “смягчение” СЧ, однако различия между спектрами частот, относящимися к 340 К и 550 К (возможно, за исключением области малых передач энергии), не превосходят

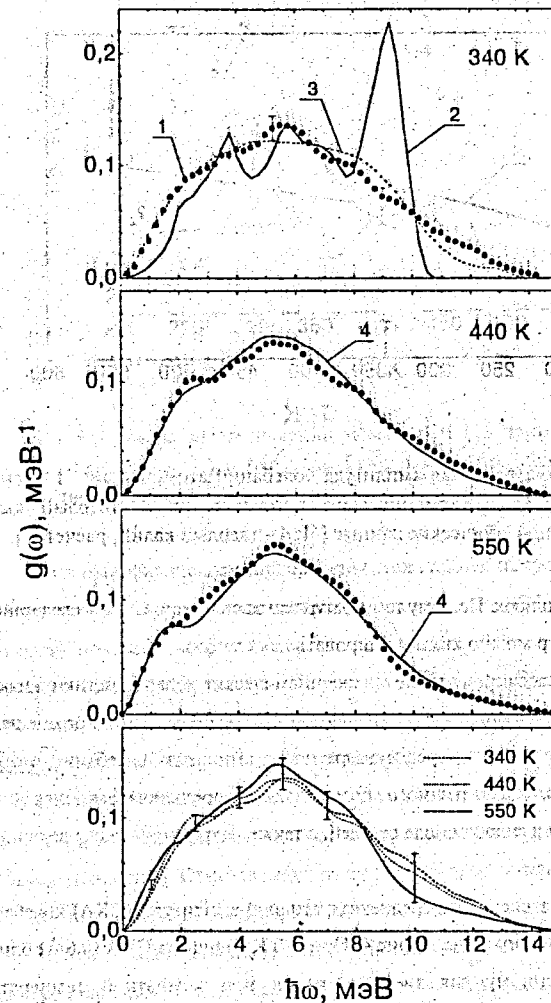


Рис. 3. Спектр частот колебаний атомов жидкого калия.
1 – эксперимент; 2 – твердый калий (300 К), расчет [4]; 3 – жидкий калий (340 К), МД-расчет [5]; 4 – расчет в рамках модели [9].

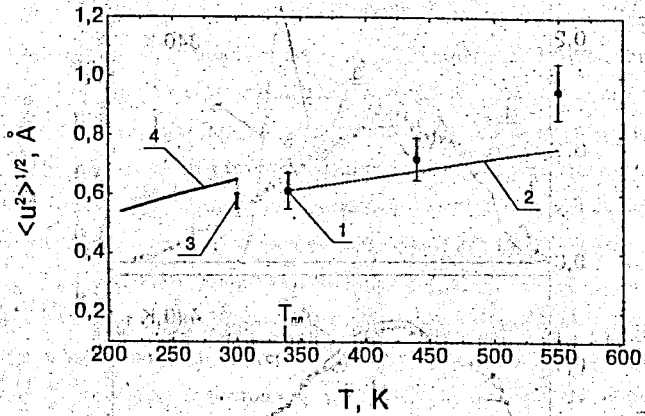


Рис. 4. Среднеквадратичная амплитуда колебаний атомов калия: 1 – данная работа; 2 – оценка в гармоническом приближении; 3 – твердый калий (295 K), рентгенографические данные [6]; 4 – твердый калий, расчет [7].

экспериментальных ошибок. Поэтому температурную зависимость СЧ в исследованном интервале температур можно квалифицировать как слабую.

На основе СЧ рассчитаны такие микродинамические характеристики жидкого калия, как автокорреляционная скоростная функция, среднеквадратичное смещение атомов как функция времени, среднеквадратичная амплитуда колебаний атомов, силовая постоянная межатомного потенциала и среднеквадратичная сила, действующая на атом в силовом поле соседей, а также макроскопическая величина – параметр Грюнайзена.

Температурная зависимость среднеквадратичной амплитуды (СКА) колебаний атомов жидкого калия показана на рис. 4. При 340 K величина СКА (0.6 Å) близка к значению, найденному для твердого калия при комнатной температуре рентген-дифракционным методом [6]: 0.55 – 0.6 Å, и расчетным путем [7]: 0.65 Å. Видно, что амплитуда колебаний атомов растет с температурой явно быстрее, чем предсказывает гармоническое приближение (пунктирная кривая). Этот рост превосходит экспериментальные ошибки и подтверждает тем самым, что отмеченное смягчение СЧ с ростом температуры является реальным эффектом.

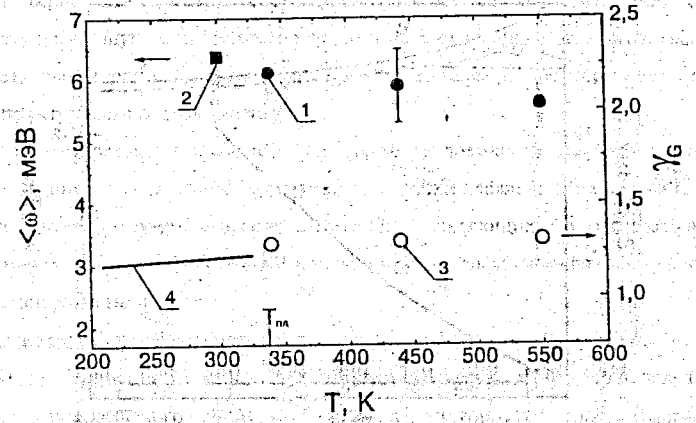


Рис. 5. Первый энергетический момент СЧ (1 – данная работа; 2 – оценка по результатам [4]) и параметр Грюнайзена для калия (3 – данная работа; 4 – твердый калий [8]).

Полезная физическая информация может быть получена также из анализа температурной зависимости энергетических моментов СЧ. Так, первый момент, который показан на рис. 5, дает возможность найти усредненный по СЧ параметр Грюнайзена (рис. 5). Видно, что параметр Грюнайзена для калия в интервале температур 340 – 550 K не зависит от температуры и близок к значению, найденному для твердого калия в окрестности точки плавления [8]. Малое значение параметра Грюнайзена ($\gamma_G \approx 1 - 1.5$) является свойством жидкостей, для которых характерно слабое затухание коллективных мод (слабая “ангармоничность”). Отмечавшаяся выше незначительная температурная деформация СЧ, по-видимому, является отражением этого обстоятельства.

Таким образом, анализ температурной зависимости СЧ и полученных на его основе среднеквадратичной амплитуды колебаний атомов и силовой постоянной межатомных взаимодействий, а также близость значений параметра Грюнайзена для твердого металла и расплава вблизи точки плавления подтверждают существующее представление о жидких щелочных металлах и, в частности, о калии, как о слабо “ангармонической” жидкости.

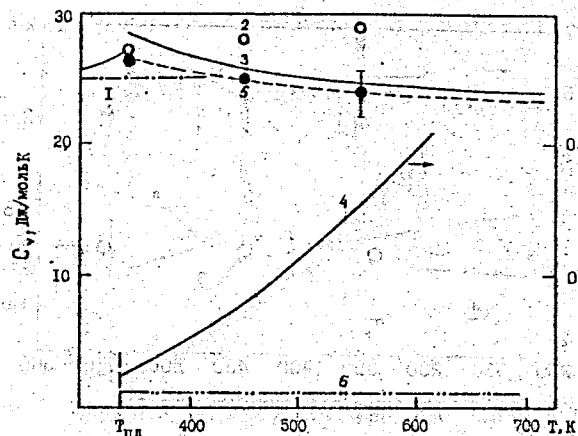


Рис. 6. Isochoric heat capacity of liquid potassium.

1 – закон Дюлонга-Пти; 2 – расчет с учетом температурной зависимости C_V ; 3 – справочные данные [10]; 4 – относительная доля диффузионных мод в C_V ; 5 – учтен вклад диффузионных мод в C_V ; 6 – оценка конфигурационной составляющей.

Как известно, СЧ дает возможность связать микродинамику вещества с его макроскопическими, в частности, термодинамическими свойствами. В данной работе на основе экспериментального СЧ получена изохорная теплоемкость жидкого калия. Для этого СЧ описан аналитической зависимостью, представляющей собой суперпозицию двух составляющих, связанных с эффектами продольных и поперечных возбуждений в жидкости [9] (рис. 3). Теплоемкость, рассчитанная с использованием температурной зависимости C_V , показана на рис. 6.

Однако прежде, чем сравнивать этот расчет с известными данными, следует отметить, что в нем никак не учитывается вклад диффузионных мод в СЧ и термодинамику системы. При температурах, близких к точке плавления, этот вклад невелик (рис. 6), однако, по мере повышения температуры и роста диффузионной подвижности атомов металла, его влияние на СЧ может оказаться заметным. Теплоемкость, рассчитанная с учетом вклада диффузионных мод в СЧ, также показана на рис. 6. Видно, что температурный ход теплоемкости

передан верно, однако полученные нами значения несколько меньше справочных [10]. Эту небольшую разницу можно отнести на счет конфигурационного вклада (рис. 6), связанного с тепловым расширением металла и происходящими при этом структурными перестройками.

Таким образом, при расчете изохорной теплоемкости жидкого калия в области температур, не слишком удаленных от точки плавления (на 250 – 300 К), наряду с учетом ангармонических эффектов, проявляющихся в температурной деформации СЧ, необходимо принимать во внимание диффузионную подвижность атомов жидкого металла.

В четвертой главе рассмотрен процесс самодиффузии в жидком калии.

Из экспериментальных ДДС в температурном интервале 340 – 550 К получены законы некогерентного квазиупругого рассеяния при $Q = \text{const}$. Выделены естественные линии ЗНКУР и показано, что их форма хорошо описывается лоренцевской кривой.

Сделаны оценки вклада когерентного рассеяния в квазиупругое рассеяние и установлено, что вклад этот незначителен и влиянием когерентного квазиупругого рассеяния в условиях нашего эксперимента можно пренебречь.

Из данных по интегральной интенсивности ЗНКУР получены значения среднеквадратичных амплитуд колебаний атомов жидкого калия, которые в пределах ошибок совпадают с амплитудами колебаний, рассчитанными на основе СЧ.

Зависимость полуширины естественной линии ЗНКУР от квадрата передаточного волнового вектора нейтрона $\Delta E_c(Q)$ (рис. 7) проанализирована в рамках ряда простейших моделей диффузии: модели эффективной массы [11], модели скачковой диффузии [12] и модели смешанной диффузии [13] как суперпозиции скачкового и непрерывного механизмов диффузионного процесса.

Из анализа, проведенного на основе статистического критерия согласия, установлено, что предпочтение следует отдать модели смешанной диффузии.

Хотя модель смешанной диффузии удовлетворительно описывает экспериментальные точки $\Delta E_c(Q)$ (рис. 7), существуют соображения, заставляющие в данном случае относиться к этой модели с осторожностью. Значения параметра модели – времени оседлой жизни атома τ_0 – для жидкого калия представляются нам

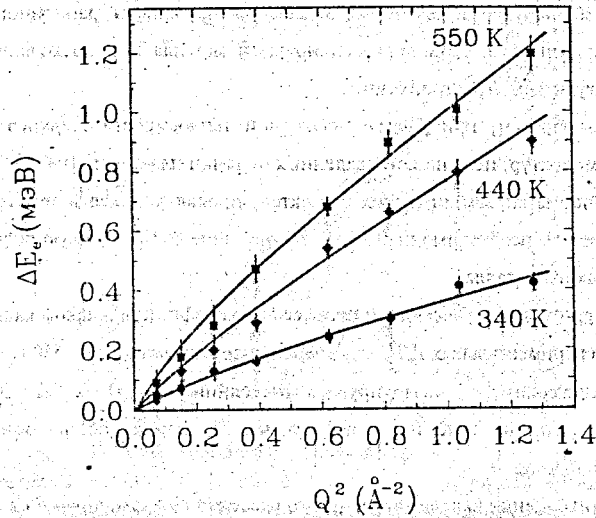


Рис. 7. Полуширина естественной линии ЗНКур жидкого калия как функция Q^2 . Экспериментальные точки описаны кривыми по модели смешанной диффузии [13].

завышенными: при $T = 340 \text{ K}$ $\tau_0 \approx 10^{-11} \text{ с}$, а согласно известным оценкам для натрия $\tau_0 \approx (2 - 5) \times 10^{-12} \text{ с}$ в точке плавления и немного выше. В то же время, оцененная энергия активации скачкового процесса самодиффузии в калии для высоких температур (49,2 мэВ) оказывается близка к средней энергии теплового движения атомов расплава (при $T = 550 \text{ K}$ $k_B T = 47,4 \text{ мэВ}$). Таким образом, понятие активационного механизма самодиффузии в этих условиях теряет смысл.

В связи со сказанным второй путь, по которому был проведен анализ экспериментальной зависимости $\Delta E_c(Q, T)$, состоял в описании этих данных на основе теории взаимодействующих мод [14], опирающейся на гидродинамические представления. Согласно этой теории взаимодействие диффузионной моды с долгоживущими сдвиговыми возбуждениями приводит к замедлению диффузионного процесса и отклонению при малых Q полуширины естественной линии ЗНКур от зависимости, предсказываемой моделью простой диффузии ($\Delta E_c(Q^2) = 2\hbar Q^2 D$).

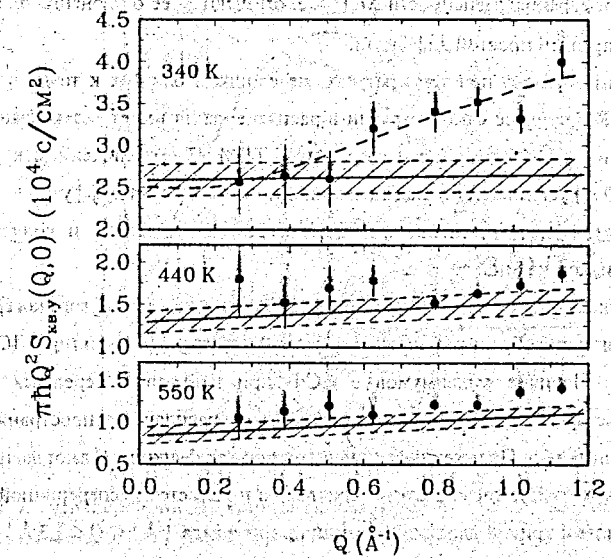


Рис. 8. Зависимость приведенного максимума $S_{max}(Q, 0)$ от Q .

Экспериментальные точки описаны в рамках ТВМ [14] с использованием табличных значений D , ρ и ν [10]. Заштрихованные области соответствуют доверительному интервалу коэффициента самодиффузии. Пунктирная кривая — описание по модели смешанной диффузии [13].

На рис. 8 показаны зависимости максимума ЗНКур $S_{max}(Q, 0)$ в приведенной форме от Q . Вместе с ними проведены прямые, рассчитанные в рамках ТВМ с использованием табличных значений коэффициента самодиффузии D , плотности ρ и кинематической вязкости ν [10]. Видно, что при температурах 440 К и 550 К экспериментальные данные в пределах ошибок близки к предсказаниям ТВМ во всей области Q , соответствующей квазиупругому рассеянию: $0,27 \leq Q \leq 1,13 \text{ Å}^{-1}$. При $T = 340 \text{ K}$ ($T/T_m = 1,01$) согласно с ТВМ имеет место только при малых Q .

Вместе с тем, при 340 К модель смешанной диффузии неплохо отслеживает ход экспериментальной кривой. Не исключено, что вблизи тройной точки усиливается вклад активационного механизма диффузии и в диффузионном поведении расплава возможно появление эффектов квазикристалличности, которые

определяют характер зависимости $\Delta E_c(Q)$ и отвечают за ее отклонение от прямой, соответствующей простой диффузии.

Таким образом, при температурах, не слишком близких к точке плавления (440, 550 К), процесс самодиффузии в расплаве калия имеет безактивационный характер и может быть описан с помощью ТВМ. С приближением к тройной точке (340 К) усиливается вклад активационного механизма диффузии.

В пятой главе проанализированы когерентные эффекты и коллективные моды в жидком калии.

Из экспериментальных ДДС выделена составляющая неупругого когерентного рассеяния и преобразована в динамический структурный фактор (ДСФ) при $Q = \text{const}$. Наличие максимумов в ДСФ при ненулевых передачах энергии свидетельствует о существовании в исследуемом расплаве распространяющихся коллективных мод. Положения этих максимумов как функция Q дают зависимость, аналогичную той, которая в случае кристаллов называется дисперсионной кривой. Участок такой кривой для жидкого калия в интервале $1 \text{ \AA}^{-1} < Q < 1.3 \text{ \AA}^{-1}$ для двух температур показан на рис. 9.

Из описания экспериментальных точек рис. 9 теоретическим выражением для дисперсионной кривой продольных мод, полученным применительно к простым жидкостям в квазикристаллическом приближении [9], определены величины $\hbar\omega_c$ — средняя энергия коллективных мод в жидкости, и r_0 — расстояние, соответствующее минимуму потенциала межчастичного взаимодействия. Оказывается, что средняя энергия коллективных мод уменьшается с ростом температуры и имеет сходную температурную зависимость с величиной второго энергетического момента СЧ колебаний атомов жидкого калия.

Дисперсионная кривая и максимальная энергия коллективных мод жидкого калия при температуре вблизи точки плавления, будучи представлены в относительных единицах, логично вписываются в общую картину, присущую жидким щелочным металлам.

Найденные из анализа дисперсионной кривой параметры ω_c и r_0 позволили рассмотреть некоторые особенности релаксационных процессов в жидком калии на основе критерия немарковости релаксации флуктуаций плотности γ [15].

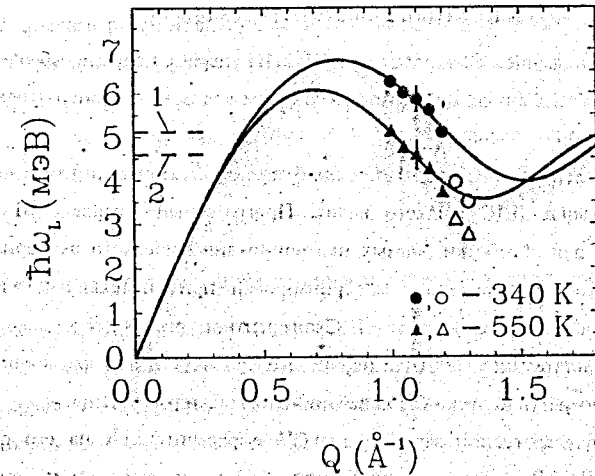


Рис. 9. Дисперсионные кривые коллективных мод в жидком калии. Экспериментальные точки описаны в квазикристаллическом приближении [9] — сплошные кривые. Пунктирные прямые показывают величину $\hbar\omega_c$. 1 — 340 К; 2 — 550 К.

В случае некогерентного квазиупругого рассеяния релаксационные процессы, связанные с диффузионными флуктуациями плотности частиц жидкости, носят “квазимарковский” характер ($\gamma \gg 1$). Однако при переходе в область неупругого рассеяния величина критерия немарковости резко уменьшается: $\gamma \leq 10$, т.е. для релаксации флуктуаций плотности, связанных с колебательными степенями свободы отдельных частиц, эффекты статистической памяти могут оказаться уже существенными.

В случае когерентного рассеяния релаксационные процессы, соответствующие флуктуациям плотности для коллективных мод, носят немарковский характер ($\gamma \leq 1$). Следовательно, при их теоретическом описании необходим учет эффектов статистической памяти.

Таким образом, рассеяние медленных нейтронов позволяет прямо зарегистрировать и непосредственно наблюдать немарковские релаксационные процессы в жидкости.

8. Зазежев М.В., Новиков А.Г., Савостин В.В. Изохорная теплоемкость и ангармонические эффекты в жидком калии // Расплавы. 1994. № 4. С. 3 - 7.
9. Novikov A.G., Ivanovskii M.N., Savostin V.V., Shimkevich A.L., Sobolev O.V., Zaezjev M.V. Self-diffusion in liquid potassium // J. Phys.: Condens. Matter. 1996. V. 8. № 20. P. 3525 - 3536.
10. Novikov A.G., Savostin V.V., Shimkevich A.L., Yulmetyev R.M., Yulmetyev T.R. Coherent effects and relaxation processes in liquid potassium // Physica B. 1996. V. 228. № 3-4. P. 312 - 318.
11. Novikov A.G., Savostin V.V., Shimkevich A.L., Zaezjev M.V. Collective dynamics of liquid potassium studied by inelastic neutron scattering // Physica B. 1997. V. 234-236. P. 359 - 361.

Цитируемая литература

1. Sears V.F. Thermal-Neutron Scattering Lengths and Cross Sections for Condensed-Matter Research: Report AECL № 8490. Chalk River, 1984.
2. Lovesey S.W. Density fluctuations in classical monoatomic liquids // J. Phys. C. 1971. V. 4. № 18. P. 3057 - 3064.
3. Rapeanu S., Padureanu I., Rotarescu G., Ioni M., Novikov A.G., Fomichev N.K. Dynamic scattering functions for liquid sodium at 413 K // Rev. Roum. Phys. 1981. V. 26. № 10. P. 1115 - 1122.
4. Gurskii Z.A., Chushak Ya.G. Lattice dynamics of binary alloys // Phys. Stat. Sol. (b). 1990. V. 157. № 2. P. 557 - 566.
5. Gonzalez Miranda J.M. A molecular dynamics study of liquid potassium at 340 K // J. Phys. F. 1986. V. 16. № 1. P. 1 - 9.
6. Kumar S., Visvamisara M. Debye-Waller factor of potassium // Phys. Lett. A. 1971. V. 37. № 2. P. 143 - 144.
7. Vaks V.G., Zarochentsev E.V., Kravchuk S.P., Safronov V.P., Trefilov A.V. Lattice heat capacity and thermal vibrations in alkali metals // Phys. Stat. Sol. (b). 1978. V. 85. № 1. P. 63 - 74.
8. Shouten D.R., Swenson C.A. Linear-thermal-expansion measurements on potassium metal from 2 to 320 K // Phys. Rev. 1974. V. 10. № 6. P. 2175 - 2185.

9. Hubbard J., Beeby J.L. Collective motion in liquids // J. Phys. C. 1969. V. 2. № 3. P. 556 - 571.
10. Handbook of Thermodynamic and Transport Properties of Alkali Metals. Ed. R.W. Ohse. Oxford: Blackwell, 1985. 985 p.
11. Egeistaff P.A., Schofield P. On the evaluation of the thermal neutron scattering law // Nucl. Sci. Engng. 1962. V. 12. № 2. P. 260 - 270.
12. Singwi K.S., Sjölander A. Diffusive motions in water and cold neutron scattering // Phys. Rev. 1960. V. 119. № 3. P. 863 - 871.
13. Оскоцкий В.С. К теории квазиупругого рассеяния холодных нейтронов в жидкости // Физика твердого тела. 1963. Т. 5. В. 4. С. 1082 - 1085.
14. Morkel C., Gronemeyer C., Glaser W. Hydrodynamic mode coupling in a simple liquid // Static and dynamic properties of liquids: Proc. of Symp., Dubrovnik, 27 Jun. - 2 Jul. 1988 / Springer Proc. in Physics (Berlin: Springer). 1989. V. 40. P. 41 - 46.
15. Шурыгин В.Ю., Юльметьев Р.М. Пространственная дисперсия критерия немарковости релаксационных процессов в жидкости // Укр. физ. журн. 1991. Т. 36. № 11. С. 1688 - 1691.

Kali-