

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
Лаборатория нейтронной физики

На правах рукописи

М.Г.Землянов

ИССЛЕДОВАНИЕ НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ ХОЛОДНЫХ НЕЙТРОНОВ
НЕКОТОРЫМИ ВОДОРОДСОДЕРЖАЩИМИ ВЕЩЕСТВАМИ

Автореферат диссертации на соискание ученой
степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель
доктор физико-математических наук
М.И.Певзнер

1 9 6 5

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ
Лаборатория нейтронной физики

На правах рукописи

М.Г.Землянов

ИССЛЕДОВАНИЕ НЕУПРУТОГО РАССЕЯНИЯ ХОЛОДНЫХ НЕЙТРОНОВ
НЕКОТОРЫМИ ВОДОРОДСОДЕРЖАЩИМИ ВЕЩЕСТВАМИ

Автореферат диссертации на соискание ученой
степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель
доктор физико-математических наук
М.И.Певзнер

1965

**Научно-техническая
библиотека
ОИЯИ**

Работа выполнена в Институте атомной энергии имени
И.В.Курчатова

Среди веществ, широко исследуемых в последние годы с помощью неупругого рассеяния медленных нейтронов, значительное место занимает водородсодержащие соединения. Интерес к исследованию динамики водородсодержащих веществ методами нейтронной физики первоначально стимулировался практическим использованием ряда водородсодержащих соединений в реакторостроении, где они находят широкое применение в качестве материалов для замедлителей и теплоносителей. Решение задачи термализации нейтронов в указанных соединениях требует непосредственного изучения неупругого взаимодействия нейтронов с веществом. Однако изучение неупругого рассеяния нейтронов представляет и самостоятельный интерес. Физические свойства водородсодержащих веществ в значительной степени определяются динамикой атомов или молекул, составляющих эти вещества. Поэтому интерес как практический, так и теоретический представляет информация о спектре возбуждения вещества в целом и о зависимости спектра возбуждения от структуры и температуры вещества. Метод неупругого рассеяния нейтронов позволяет получать такую информацию. Более того, он позволяет исследовать оптические уровни, запрещенные правилами отбора для электромагнитных переходов; низкоэнергетические уровни, связанные с вращением молекулярных групп; характер диффузионного движения. Получение такого рода информации другими методами или очень затруднено, или принципиально невозможно.

В диссертационной работе приведены результаты исследования с помощью неупругого рассеяния холодных нейтронов двух типов водородсодержащих веществ — полифенилов и гидрида и дейтерида лития.

В первой главе диссертации дается обзор основных теоретических работ, рассматривающих связь динамических характеристик водородсодержащих веществ с сечением неупругого рассеяния нейтронов. Отмечается, что хотя рассеяние нейтронов водородсодержащими соединениями носит преимущественно некогерентный характер, однако вследствие сложной структуры этих соединений (в элементарной ячейке расположено несколько атомов) нет простой связи между спектром рассеянных нейтронов и функцией распределения частот колебаний подобно той, какая имеет место при некогерентном рассеянии нейтронов кристаллами с решеткой Брэгга. Наблюдаемое экспериментально сечение оказывается пропорциональным фононному спектру и функции, зависящей от комбинации векторов поляризации. Вектора поляризации, в принципе, могут быть определены из измерений когерентного однофононного рассеяния, как это было показано теоретически и как это было продемонстрировано экспериментально для Na и Ge . Однако для водородсодержащих веществ экспериментальное определение векторов поляризации практически невозможно вследствие малой амплитуды когерентного рассеяния нейтронов на водороде. Остается единственный путь получения информации о спектре возбуждений из экспериментальных данных — это путь модельных расчетов и сравнения результатов расчета с экспериментом. Предложено много различных моделей для объяснения результатов по неупругому рассеянию нейтронов. Все предложенные модели используют для описания, в основном, или формализм Земаха и Глаубера, или формализм пространственно-временных коррелятивных функций Ван-Хова. Исследования с помощью неупругого рассеяния медленных нейтронов выполнены для большого круга водородсодержащих веществ. В качестве иллюстрации рассматриваются результаты, полученные при исследовании легкой и тяжелой воды, гидридов металлов, метана, галогенидов аммония и водорода, ферроэлектриков, сложных солей аммония и кристаллогидратов. Для всех указанных веществ с помощью неупругого рассеяния нейтронов исследования были выполнены преимущественно для оптической части

спектра возбуждений, и ни для одного из них не было проведено восстановление спектра колебаний во всем интервале частот.

Во второй главе дается описание экспериментальной установки для исследования динамики вещества в конденсированном состоянии с помощью неупругого рассеяния холодных нейтронов, созданной совместно с Н.А.Черноплековым. Установка смонтирована на одном из горизонтальных каналов реактора ИРТ-1000 Института атомной энергии им.И.В.Курчатова. Монохроматизация падающих нейтронов осуществляется путем фильтрации исходного спектра реактора через поликристаллический бериллий. Диаметр фильтра 100 мм, длина основного фильтра 250мм, а дополнительного 50 мм. Введение дополнительного неохлаждаемого фильтра, расположенного внутри биологической защиты реактора, позволило существенно уменьшить фон, обусловленный примесью быстрых нейтронов в исходном пучке. Охлаждение основного фильтра до температуры жидкого азота значительно уменьшает ослабление потока холодных нейтронов за счет процессов неупругого рассеяния в материале фильтра. Угловое расхождение пучка первичных нейтронов $\sim 4^\circ$, поток холодных нейтронов в месте расположения образца при мощности реактора 1 Мвт составляет 6×10^6 н/см².сек; кадмиевое отношение $>7 \cdot 10^3$. Энергетический анализ рассеянных образцом нейтронов проводится под углом 90° к падающему пучку по методу времени пролета. Прерывание пучка рассеянных нейтронов осуществляется с помощью одного из трех сменных механических прерывателей. Однако с прямолинейными щелями ($S = 3$ мм) и двух с параболическими ($S = 0,8$ мм и 1 мм) /. Применение сменных прерывателей позволяет обеспечить в широком интервале энергий рассеянных нейтронов (1–200 мэв) разрешение нейтронного спектрометра 5–8% по энергии без существенной потери интенсивности. Роторы всех прерывателей обладают большими размерами пакета щелей (120x80 мм²), что позволяет использовать широкий пучок нейтронов. Пролетная база нейтронного спектрометра составляет 494,5 см. Регистрация рассеянных нейтронов осуществляется детектором, представляющим собой пакет из 20 пропорциональных счетчиков BK . Диаметр счетчика 35 мм, длина 1000 мм. Счетчики наполнены BK до давления 700 мм рт.ст. с обогащением по изотопу B^{10} до 85%. Счетчики распределены на группы, по четыре счетчика в каждой. Такое распределение сделано

с целью введения временной задержки одной части детектора относительно другой для уменьшения неопределенности, связанной с геометрическими размерами детектора в направлении движения нейтронного пятна (угловая расходимость пучка рассеянных нейтронов $\sim 10^\circ$). Задержка импульсов одной группы счетчиков относительно другой осуществляется с помощью специальной системы временных задержек на магнотстрикционных линиях. Применение временных задержек улучшает разрешение нейтронного спектрометра по времени пролета установки в 2,5 раза без потери интенсивности рассеянных нейтронов. Временная сортировка импульсов детектора проводится с помощью 128-канального временного анализатора. Стабилизация скорости вращения роторов механических прерывателей осуществляется с помощью специальной электронной схемы, основанной на сравнении фазы и частоты импульсов опорного генератора и стартового устройства механического прерывателя. Точность автоматического поддержания скорости на заданном уровне после 12 часов непрерывной работы составляет 0,2%. Установка допускает проведение измерений при расположении механических прерывателей как после образца, так и перед ним. Помещение прерывателя перед образцом дает возможность получать более узкие спектральные линии падающих нейтронов и, тем самым, обеспечивать более высокое полное разрешение установки для малых передач энергии нейтронов в процессе рассеяния. Для увеличения потока холодных нейтронов в используемом пучке графитовый слой отражателя против горизонтального канала реактора заменен на отражатель из легкой воды толщиной 23 мм и использовано подковообразное расположение тепловыделяющих элементов. Эти изменения привели к увеличению потока холодных нейтронов в 1,5 раза. Светосилу установки удобно характеризовать интенсивностью нейтронов, упруго рассеянных ванадием, приходящейся на временной канал определенной ширины. Введение такой характеристики облегчает сравнение между собой различных установок по времени пролета, поскольку градуировка всех установок, как правило, выполняется по упругому рассеянию нейтронов ванадием. Интенсивность упруго рассеянных нейтронов на образце ванадия размерами $15 \times 12 \times 1$ см³ составляет ~ 10 отсч/мин. на 64 мксек. ширину канала анализатора при фоне $\sim 0,5$ отсч/мин.

Относительно небольшая толщина биологической защиты реакто-

ра, введение указанных изменений в активной зоне и отражателе реактора, использование сменных прерывателей с большими размерами пакета целей и системы временных задержек детектора нейтронов позволили создать установку, которая по своим параметрам, несмотря на низкий поток тепловых нейтронов в активной зоне $\sim 2 \cdot 10^{13}$ н/см²сек, являлась одной из лучших среди такого типа установок.

В третьей главе диссертационной работы описываются проведение измерений неупругого рассеяния холодных нейтронов, обработка полученных результатов и их обсуждение. Измерения неупругого рассеяния нейтронов были выполнены для двух типов водородсодержащих веществ—сложных (полифенил: бензол, дифенил, моноизопротилдифенил) и простейших (гидрид и дейтерид лития).

а) Полифенил.

Ряд физических свойств полифенилов (повышенная радиационная и термическая стойкость, высокая температура кипения и др.) делает эти вещества перспективными с точки зрения их использования в реакторостроении в качестве замедлителей нейтронов и теплоносителей.

Естественно, что интерес существует и к изучению с помощью неупругого рассеяния нейтронов динамики полифенилов, ее изменений в зависимости от структуры молекулы и фазового состояния вещества. В связи с этим неупругое рассеяние холодных нейтронов исследовалось на трех представителях класса полифенилов (бензол, дифенил, моноизопротилдифенил), существенно различающихся структурой молекулы. Такое комплексное исследование полифенилов было выполнено впервые.

Динамика бензола и моноизопротилдифенила исследовалась только в жидком состоянии ($T = 290^\circ\text{K}$), а дифенила как в твердом, так и в жидком состояниях ($T = 290^\circ\text{K}$, 340°K , 343°K , 348°K , 362°K). Чтобы уменьшить влияние процессов многократного рассеяния, измерения были выполнены на образцах малой толщины (пропускание 0,9 для холодных нейтронов). В экспериментальные данные вводились методические поправки на отклонение эффективности детектора нейтронов от закона $1/\nu$, поглощение нейтронов в

воздухе на пролетном пути между образцом и детектором, рассеяние на материале кассеты образца, влияние функции пропускания механического прерывателя и влияние полной функции разрешения, представляющей собой свертку функции разрешения спектрометра по времени пролета и первичной линии холодных нейтронов. При учете влияния разрешения приближенное решение интегрального уравнения, описывающего результаты эксперимента, конструировалось из функций разрешения. Алгоритм решения имел вид

$$\sigma_{\alpha+1}(E) = \sigma_{\alpha}(E) \frac{\sum_n \gamma_n \frac{\tilde{\sigma}(E_n)}{\sigma_{\alpha}(E)} K(E, E_n)}{\sum_n \gamma_n K(E, E_n)}, \quad (1)$$

где

$$\tilde{\sigma}_{\alpha}(E) = \int K(E, E_n) \sigma_{\alpha}(E_n) dE_n, \quad (2)$$

$K(E, E_n)$ - полная функция разрешения, $\tilde{\sigma}(E_n)$ - экспериментальное значение сечения, γ_n - статистический вес экспериментальных точек. При $\alpha \approx 10$ получалось приближение $\sigma_{\alpha}(E)$, которое согласно (2) дает $\tilde{\sigma}_{\alpha}(E)$, совпадающее в пределах статистической точности с экспериментальными значениями $\tilde{\sigma}(E_n)$. Влияние двухфононных процессов на экспериментально полученное сечение рассеяния нейтронов полифенилами не учитывалось.

Энергетическая зависимость дважды дифференциального сечения рассеяния нейтронов для всех исследованных полифенилов не может быть описана моделью одноатомного газа с постоянным значением эффективной массы. Для бензола наблюдается удовлетворительное согласие результатов эксперимента и результатов расчета, выполненного с учетом внутримолекулярных колебаний. В выбранной модели для бензола вращение и трансляция учитываются в приближении свободного газа, а внутримолекулярные колебания обрабатываются в приближении кубического кристалла с одним атомом в элементарной ячейке. Однако результаты таких расчетов не согласуются с экспериментальными данными для дифенила и моноизопротилдифенила. Для удовлетворительного описания экспериментального сечения необходим более корректный учет влияния других степеней свободы, связанных как с внутримолекулярными, так и с межмолеку-

лярными движениями.

Из экспериментально измеренного дважды дифференциального сечения рассеяния нейтронов, как было показано в диссертации, строго, т.е. без привлечения каких-либо модельных предположений, может быть восстановлена единственная функция $\theta(\epsilon)$, являющаяся динамической характеристикой квадратов смещения атомов из положения равновесия

$$\theta(\epsilon) = g(\epsilon) \sum_j A_j \sigma_j / M_j e^{-2W_j} |\bar{c}_j(\epsilon)|^2 \quad (3)$$

Функция $\theta(\epsilon)$ дает достаточную информацию для описания взаимодействия нейтронов с фононной ветвью возбуждения. Для восстановления из эксперимента функции распределения частот колебаний, необходимой для термодинамического описания фононной ветви возбуждения, требуется знание энергетической зависимости векторов поляризации. Для оптической части спектра, в которой преимущественно колеблется водород и где $|C_n(\epsilon)|^2 \approx 1$, определенная из эксперимента $\theta(\epsilon)$ качественно передает особенности спектра возбуждения.

Энергетическое положение особенностей в $\theta(\epsilon)$ для бензола и дифенила, в основном, согласуется с данными, полученными независимо из оптических исследований. Кроме того, в $\theta(\epsilon)$ для жидкого бензола проявляется максимум при $\epsilon = 50$ мэв ($\nu = 405 \text{ см}^{-1}$) и для дифенила - слабый максимум в области низких частот $\epsilon = 3,5$ мэв ($\nu = 29 \text{ см}^{-1}$), которые непосредственно в оптических измерениях не наблюдались. Эти особенности отвечают соответственно основному колебательному состоянию молекулы бензола и колебаниям молекулы дифенила как целого вокруг оси, перпендикулярной плоскости молекулы. Повышение температуры дифенила, а также переход через точку плавления, не сопровождается качественными изменениями в энергетической зависимости $\theta(\epsilon)$. Однако при повышении температуры наблюдается смещение энергетического положения особенностей $\theta(\epsilon)$ в сторону меньших частот. Функция $\theta(\epsilon)$ для всех полифенилов имеет непрерывный вид в отличие от результатов оптических исследований, где спектр носит дискретный характер с образованием энергетических щелей между линиями спектра. Переход от молекул типа бензола к более сложным сопровождается сущест-

венным изменением их динамики. Плотность смещений, отвечающих малым изменениям энергии, уменьшается с ростом молекулярного веса. Поэтому наилучшими замедляющими свойствами в области малых энергий нейтрона обладает бензол. Для моноизопротилдифенила в области больших передач энергии наблюдается значительный рост плотности смещений. Такое увеличение может объясняться включением дополнительных степеней свободы изопротиловой группы.

б) Гидрид и дейтерид лития

Динамика гидридов металлов с помощью неупругого рассеяния нейтронов исследовалась в ряде работ. Однако эти исследования ограничивались гидридами со структурой типа внедрения и даже для этих гидридов изучалась только область оптических частот колебаний водорода в решетке. Ни в одной из работ не проводилось количественного восстановления фононного спектра решетки из экспериментальных данных. В связи с этим представлялось весьма интересным исследовать с помощью неупругого рассеяния нейтронов динамику гидрида со структурой замещения во всем интервале частот (оптика и акустика) с целью восстановления его фононного спектра. Такая попытка впервые была осуществлена в данной работе для гидрида и дейтерида лития.

Вследствие сильного поглощения нейтронов естественной смесью изотопов лития, все измерения были выполнены на образцах гидрида и дейтерида лития-7. Пропускание образцов для средней энергии падающих нейтронов составляло $\sim 0,8$. Измерения проводились при комнатной температуре.

В экспериментальные данные вводились методические поправки, аналогично полифенилам. Учитывалось также влияние двухфононных процессов на результаты измерений. Вклад двухфононных процессов оказался очень существенным в области больших передач энергии. Из результатов эксперимента была получена функция $\Theta(\epsilon)$, которая в дальнейшем использовалась для восстановления функции распределения частот колебаний. Энергетическая зависимость векторов поляризации была получена расчетным путем. Наличие простой кристаллической решетки типа $NaCl$ значительно облегчает проведение такого расчета для гидрида и дейтерида лития. Расчет векторов поляризации проведен в модели жестких ионов (модель

Келлермана) с учетом данных инфракрасного спектра. В этих расчетах определение параметра потенциала отталкивания было проведено не как обычно из интегрально измеренной величины сжимаемости, а из значения граничных оптических частот, полученных в независимых экспериментах. В указанных модельных предположениях был вычислен также фононный спектр и энергетическая зависимость фактора Дебая-Валлера.

Значения граничных оптических частот восстановленного из нейтронного эксперимента $g(\omega)$ удовлетворительно согласуются с данными оптических измерений для LiH и LiD . Из сравнения расчетной и восстановленной из нейтронного эксперимента функции распределения частот колебаний следует, что модель недеформируемых ионов удовлетворительно описывает акустические и поперечные оптические ветви фононного спектра, продольная оптическая ветвь оказывается в модельных расчетах завышенной. Эти результаты находятся в согласии с данными, полученными для других ионных кристаллов. Особенности фононного спектра для гидрида и дейтерида лития не всегда однозначно связаны с особенностями дважды дифференциального сечения рассеяния нейтронов. В связи с этим представляется необоснованным попытки отождествления особенностей спектра рассеянных нейтронов и функции $g(\omega)$ для систем с большой разницей масс и сечений, которые делаются в ряде работ последнего времени. При переходе от гидрида к дейтериду лития изменению подвергается только оптическая область фононного спектра, в то время как акустическая остается неизменной. Это еще раз качественно подтверждает, что тяжелый атом колеблется, главным образом, в акустических, а легкий — в оптических ветвях. Хотя в случае дейтерида лития некогерентное рассеяние составляет около 20% от полного рассеяния, однако из сравнения между собой характера восстановленного фононного спектра для LiH и LiD следует, что когерентные эффекты, во всяком случае, не искажают связь между сечением неупругого рассеяния и функцией распределения частот. Отсюда следует, что для целей восстановления фононного спектра из экспериментальных данных по неупругому рассеянию холодных нейтронов на поликристаллических образцах с удовлетворительной точностью может быть использовано "некогерентное" приближение.

Исходя из восстановленных значений функций распределения частот для LiH и LiD , была вычислена энергетическая зависимость парциального фактора Дебая-Валлера для H, D и Li . Парциальные факторы как для легкой составляющей, так и для лития резко зависят от передаваемой энергии.

Для колебаний H и D это является следствием отсутствия параметра малости m/M (m - масса нейтрона, M - масса рассеивателя), который имеет место при рассеянии нейтронов на тяжелых ядрах. Для лития, хотя это отношение равно $1/7$, однако своеобразное поведение векторов поляризации, zvyšающее роль акустических частот, приводит к тому, что различие в величинах фактора Дебая-Валлера для Li и H не столь велико, как можно было бы ожидать из отношения масс. Результаты расчета фактора Дебая-Валлера на основании восстановленной из нейтронного эксперимента функции $g(\omega)$ качественно согласуются с расчетом по модели Келлермана и количественно удовлетворительно согласуются с данными независимых нейтроноструктурных и рентгеноструктурных измерений.

Материалы диссертационной работы докладывались на ряде Симпозиумов МАГАТЭ (1960, 1962, 1964 г.г.), конференции по термализации нейтронов в Брукгейвской национальной лаборатории (1962 г.), рабочих совещаниях по физике медленных нейтронов в Дубне (1961, 1964 гг.) и опубликованы в трудах указанных совещаний и научных журналах.

1. М.Г.Землянов, Н.А.Черноплеков "Pile Neutron Research in Physics" (Proceed. of Symp. 1960, Vienna) JAEA, Vienna, 1961
2. М.Г.Землянов, Н.А.Черноплеков ПТЭ 5, 40 (1962)
3. А.Е.Головин, М.Г.Землянов, А.П.Цитович, Н.А.Черноплеков ПТЭ, 5 (1962), 77.
4. М.Г.Землянов, Н.А.Черноплеков, Материалы совещания по физике нейтронов малых энергий, Дубна, 1962 г.
5. М.Г.Землянов, Н.А.Черноплеков. "Proceed. of Symp. on Neutron Thermalization" v. IV. BNL, (1963); "Inelastic Scattering of Neutron in Solids and Liquids" (Proceed. of Symp. Chalk-River, 1962) JAEA, Vienna, 1963; *α. Э. 14, & 3.* (1963).

6. М.Г.Землянов, Н.А.Черноплеков, Ю.Л.Шитиков. Материалы совещания по физике нейтронов малых энергий, Дубна, 1965; "Inelastic Scattering of Neutrons" (Proceed. of Symp. Bombay, 1964), JAEA, Vienna, 1965.
7. М.Г.Землянов, Е.Г.Бровман, Н.А.Черноплеков, Ю.Л.Шитиков. Материалы совещания по физике нейтронов малых энергий, Дубна, 1965 "Inelastic Scattering of Neutrons" (Proceed. of Symp. Bombay, 1964), JAEA, Vienna, 1965.