

В заключение авторы выражают благодарность Н. С. Потаповой за помощь при проведении численных расчетов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Казарновский М. В.— В кн.: Теоретические и экспериментальные проблемы нестационарного переноса нейтронов. М., Атомиздат, 1971.
2. Crosshug G., Ronnberg C.— J. Nucl. Energy, 1971, v. 25, p. 361.
3. Илиева К. Д., Казарновский М. В.— Атомная энергия, 1973, т. 35, вып. 5, с. 346.
4. Katsuhisa K., Masakuni N., Yasutomo O.— Nucl. Sci. Tech., 1975, v. 12, p. 370.
5. Вейнберг А., Вигнер Е. Физическая теория ядерных реакторов. М., Изд-во иностр. лит., 1961.
6. Медведев Ю. А., Метелкин Е. В.— Атомная энергия, 1980, т. 48, вып. 5, с. 308.
7. Тихонов А. Н., Самарский А. А. Уравнения математической физики. М., Наука, 1972.
8. Бейтман Г., Эрдейи А. Таблицы интегральных преобразований. Т. I. М., Наука, 1969.
9. Зельдович Я. Б., Райзер Ю. П. Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений. М., Наука, 1966.
10. Brode H.— Ann. Rev. Nucl. Sci., 1968, v. 18, p. 153.
11. Ямпольский П. А. Нейтроны атомного взрыва. М., Атомиздат, 1961.
12. Лейпунский О. И. Гамма-излучение атомного взрыва. М., Атомиздат, 1959.

Поступила в Редакцию 29.09.80

УДК 539.171.4.162.2

Температурная зависимость сечения рассеяния холодных нейтронов и молекулярная динамика водородсодержащих веществ

ЖИТАРЁВ В. Е., СТЕПАНОВ С. Б., МОТОРИН А. М.

Известно, что для сечения рассеяния σ_s нейтронов с длиной волны $\lambda \geq 0,8 \div 1,0$ нм характерна линейная зависимость

$$\sigma_s(\lambda) = a_0 + a_1\lambda, \quad (1)$$

для тех случаев, когда минимальная энергия возбуждения или средняя передача энергии много больше энергии нейтронов. Наклон прямой a_1 определяется атомно-молекулярной динамикой рассеивающей системы [1]. Простая зависимость $\sigma_s(\lambda)$ и общие соображения о смысле a_1 давно побудили некоторых авторов [2—4] искать эмпирические связи наклона a_1 с характеристиками теплового возбуждения системы. Однако при исследовании связи σ_s с величинами, определяющими тепловое возбуждение или связанными с термофлюктуационными процессами, практически не изучена температурная зависимость $a_1(T)$. На наш взгляд, именно такой путь наиболее перспективен, особенно на эмпирическом уровне.

На основе экспериментально установленной связи наклона a_1 с термофлюктуационными процессами в веществе, общих соображений о механизме неупругого рассеяния очень холодных нейтронов, которое характеризуется наклоном, и рассмотрения практически всех экспериментальных данных для водородсодержащих веществ ранее была предложена [5] экспоненциальная аппроксимация температурной зависимости наклона

$$a_1(T) = a_{10} \exp(-\varepsilon/kT), \quad (2)$$

где ε и a_{10} — параметры, в первом приближении не зависящие от температуры. Было отмечено, что параметр ε близок к характерным энергиям возбуждения или потенциальным барьерам, тормозящим тепловое движение (обычно вращение).

Действительно, предлагаемый вид зависимости $a_1(T)$ не противоречит представлениям о взаимодействии холодных нейтронов, поскольку помимо упругого компонента σ_e , определяемого отдачи ядра и не зависящего от энергии нейтронов, сечение рассеяния содержит неупругую составляющую σ_{in} , которая зависит не только от энергии ($E^{-0,5}$), но и от возможности приобретения нейтроном энергии в системе. Например, при достаточно низкой температуре вещества $\sigma_{in} \rightarrow 0$ и $a_1 \rightarrow 0$. Известно, что в системе с квантованной энергией движения частиц и их полной концентрацией n_0 , при заданной температуре T , концентрация возбужденных частиц, т. е. способных передать энергию, удовлетворяет соотношению

$$n^* \approx n_0 \exp(-E^*/kT), \quad (3)$$

где E^* — характерная для системы энергия, определяющая скорость тепловых флюктуаций.

Учитывая, что в такой системе лишь возбужденные частицы участвуют в рассеянии с приобретением квантованной энергии, измеряемое сечение рассеяния можно записать в виде

$$\sigma_s = \sigma_e + \sigma_{in} = \sigma_e + \sigma_{in}^* \exp(-E^*/kT). \quad (4)$$

Линейная зависимость (1) совместно с выражением (4) приводит к аппроксимации вида (2).

Здесь не обсуждается возможная температурная зависимость σ_e , σ_{in} , E^* для конкретных систем. Соотношение (2) лишь должно подчеркнуть непосредственную связь неупругого рассеяния холодных нейтронов с тепловыми флюктуациями в системе. При этом следует иметь в виду, что экспоненциальная зависимость наклона a_1 от температуры, как и зависимость скорости тепловых флюктуаций (времени релаксации), в первую очередь

должна наблюдаться в системах с преобладающим влиянием колебательных движений оптического типа (в том числе крутильных колебаний) и активированных смещений с преодолением потенциального барьера. В системе с преобладанием непрерывного спектра возбуждений (свободное движение, акустические колебания и др.) зависимость может заметно отличаться от выражения (2).

На основе всестороннего анализа экспериментальных и расчетных данных о сечении рассеяния холодных нейтронов и характеристик теплового движения в соответствующих водородсодержащих веществах [6] получены следующие основные результаты.

1. Экспоненциальная аппроксимация (2) описывает результаты экспериментов и расчетов не хуже, чем степенная зависимость, в том числе и для газов.

2. Использование выражения (2) для паров воды и бензола показало, что в этих случаях ε заметно зависит от температуры: $\varepsilon \approx 0,5 k\bar{T}$, где \bar{T} — температура, полученная усреднением значений температуры, при которых определялось сечение рассеяния. Близкие результаты получены для рассеяния на метильной группе в жидком толуоле и на группе аммония в кристалле NH_4I (при $T > 260$ К), когда барьеры вращения должны быть весьма малы ($V \lesssim 4$ кДж/моль). Таким образом, вид зависимости $a_1(T)$ и ε можно рассматривать как дополнительный эмпирический критерий, указывающий на большую свободу вращательного движения молекул или атомных комплексов в конденсированных веществах. В этих случаях предлагается очевидное соотношение для оценки верхней границы барьера вращения:

$$V \lesssim k\bar{T}, \quad (5)$$

Полученные оценки хорошо согласуются с опубликованными данными о барьерах вращения метильной группы в толуоле и группы аммония в NH_4I ($V \lesssim 3$ кДж/моль). Наша предварительная оценка барьера вращения метильной группы в жидком дитолуолметане составляет $V \lesssim 4$ кДж/моль.

Степенная аппроксимация температурной зависимости наклона в виде $a_1(T) \sim (T/T_0)^n$ для рассмотренных веществ приводит к слабо зависящему от температуры показателю степени $n = 0,4 \div 0,8$.

3. Для рассмотренных водородсодержащих конденсированных веществ при условиях, когда не выполняется соотношение (5), т. е. при достаточно высоких потенциальных барьерах, аппроксимация вида (2) справедлива в широком интервале температуры. При этом наблюдается соотношение минимального потенциального барьера (и энергии активации) теплового движения с ε :

$$V_{\text{мин}} \gtrsim \varepsilon. \quad (6)$$

Это соотношение дает для молекулярных жидкостей общую оценку $E_{\text{ор}}$ — энергии активации ориентационного движения:

$$E_T \gtrsim E_{\text{ор}} \gtrsim \varepsilon, \quad (7)$$

где E_T — энергия активации поступательной самодиффузии.

Соотношения (5) и (6) использованы для оценки барьера внутримолекулярного вращения и энергии активации вращения молекул в жидком дифениле: $V \gtrsim 10$ кДж/моль; 18 кДж/моль $\gtrsim E_{\text{ор}} \gtrsim 10$ кДж/моль соответственно.

Для кристаллов солей аммония при сильном возбуждении ориентационного движения ($kT < < V_{\text{NH}_4} \lesssim 4$ кДж/моль) получено соотношение

$$V \approx 2\varepsilon. \quad (8)$$

Характер вращательного движения и вид потенциальной функции в этих условиях [7, 8], а также смысл параметра ε позволяют предполагать наличие связи вида

$$\varepsilon \approx E_{\text{ор}}, \quad (9)$$

которую естественно распространить на молекулярные жидкости с развитым ориентационным движением в виде термоактивируемых поворотов, переориентаций и т. д. (жидкости неассоциирующие, с симметричными молекулами, небольшой вязкостью и т. п.). В случае бензола последние условия реализуются и соотношение (9) выполняется достаточно точно: $\varepsilon = (5,5 \pm 0,2)$ кДж/моль и $E_{\text{ор}} = (6,2 \pm 0,9)$ кДж/моль.

Для веществ с сильно заторможенным вращением ($V \gtrsim 8$ кДж/моль, $kT \lesssim 0,25 V$), переходящим в крутильные колебания с одной или несколькими близкими частотами, таких как вода, лед, твердый бензол, NH_4I ($T < 250$ К) и др., найдено соотношение

$$\varepsilon \approx \hbar\bar{\omega}, \quad (10)$$

где $\bar{\omega}$ — средняя в исследованном температурном интервале частота колебаний оптического типа — обычно крутильных колебаний. В этом случае ε можно использовать для расчета барьера вращения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Яник Е., Ковальская А. — В кн.: Рассеяние тепловых нейтронов. М., Атомиздат, 1970, с. 422.
2. Rush J. e.a. — J. Chem. Phys., 1962, v. 37, N 2, p. 234.
3. Leung P. e.a. — Ibid., 1968, v. 48, N 11, p. 4912.
4. Fischer C. — Phys. Lett., 1969, v. A30, N 7, p. 393.
5. Житарёв В. Е., Степанов С. Б. — Атомная энергия, 1979, т. 46, вып. 3, с. 190.
6. Житарёв В. Е. Канд. дис. М., МИФИ, 1980.
7. Utsuro M. — J. Nucl. Sci. Techn., 1974, v. 11, N 10, p. 434.
8. Springer T. — In: Dyn. Sol. Lig. Neutr. Scatt., N.Y., 1977, p. 255.

Поступила в Редакцию 19.06.80