

КВАЗИУПРУГОЕ РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ В ВОДЕ

Г.И. Гордеев, Т.Хайдаров

Спектр квазиупругого рассеяния нейтронов в воде имеет сложную структуру, обусловленную вращениями молекул. Для переданных импульсов $\kappa < 2\text{Å}^{-1}$ он удовлетворительно описывается двумя компонентами. При этом оказывается возможным извлечение информации о микродинамике и структуре воды.

Нейтронными экспериментами на воде и на других молекулярных жидкостях [1, 2] было установлено расхождение их результатов с теорией. Простейшие динамические модели жидкости [3] оказывались слишком грубыми при анализе квазиупругого рассеяния нейтронов. Например, было обнаружено, что крылья квазиупругого пика, соответствующие большим передачам энергии, спадают более медленно, чем это следует из теории.

В 1966 г. Иванов предложил подход к задаче рассеяния нейтронов в жидкостях, преимуществом которого является возможность учета любых элементов движения молекул [4]. Им же были учтены дополнительно случайные переориентации молекул вращательного характера. В этом случае сечение квазиупругого рассеяния нейтронов описывается суммой функций Лоренца с различными интенсивностями и ширинами (см. формулу (19) работы [4]). В частности для переданных импульсов $\kappa \lesssim 2\text{Å}^{-1}$ ($\vec{\kappa} = \mathbf{k} - \mathbf{k}_0$) анализ указанной формулы дает двухкомпонентную форму спектра:

$$\frac{d^2\sigma}{d\epsilon d\Omega} = a^2 \frac{k}{2\pi\hbar k_0} \left(J_0(\kappa) \frac{\Gamma_0(\kappa)}{\Gamma_0^2(\kappa) + \epsilon^2} + J_1(\kappa) \frac{\Gamma_1(\kappa)}{\Gamma_1^2(\kappa) + \epsilon^2} \right). \quad (1)$$

Вообще говоря, вид функций $\Gamma_m(\kappa)$ ($m = 0, 1$) сложен.

Однако, в области сравнительно больших и малых κ они выглядят довольно просто¹⁾.

В области больших κ :

$$\Gamma_m(\kappa) = \frac{\hbar}{\tau} (1 - \gamma A_m) + \hbar \kappa^2 D_1 - \frac{\hbar \alpha(\kappa)}{T} f_m(\kappa), \quad (2)$$

$$\gamma = \frac{T}{T + T_1}, \quad \tau = \frac{TT_1}{T + T_1}, \quad A_m = e^{-2W} \cos m\chi,$$

где T_1 , T – времена жизни молекул по отношению к поворотам и поступательным скачкообразным перемещениям соответственно; D_1 – коэффициент непрерывной диффузии, характеризующий блуждания молекул вместе со своим окружением; χ – средний угол поворота молекул; e^{-2W} – фактор Дебая – Валлера.

Относительно функций f_0 и f_1 известно, что при $\kappa \rightarrow 0$ $f_0 \rightarrow 1$, а $f_1 \rightarrow 0$, причем в области $\kappa \sim 2\text{\AA}^{-1}$ $f_0 + f_1 \approx 1$ (график зависимости $f_m(\kappa)$ см. на рис. 1 работы [5]).

$\alpha(\kappa)$ – фурье-образ от функции распределения длин скачкообразных поступательных перемещений – монотонно убывает с увеличением κ и уже при $\kappa \sim 2\text{\AA}^{-1}$ $\alpha(\kappa) \ll 1$.

В области малых κ :

$$\Gamma_0(\kappa) = \hbar \kappa^2 D, \quad (3)$$

где D – коэффициент полной диффузии водородных атомов молекулы, а $\Gamma_1(\kappa)$ при $\kappa \rightarrow 0$ стремится к постоянному значению

$$\Gamma_1(\kappa) = \frac{\hbar}{\tau} (1 - \gamma \cos \chi).$$

В области промежуточных κ $\Gamma_1(\kappa) < \Gamma_1(0) + \hbar \kappa^2 D_1$.

При анализе своих экспериментальных данных нам не удалось удовлетворительно описать квазиупругие пики одной функцией Лоренца (рис. 1, а), в то время как двумя они достаточно хорошо описываются (рис. 1, б)²⁾.

Каждая из компонент 1, 2 характеризуется своей шириной Γ_0 и Γ_1 соответственно. Их зависимости от κ^2 , представленные на рис. 2, качественно отражают предсказания теории. Действительно, в области $\kappa^2 \approx 2\text{\AA}^{-2}$ ширины выходят на свои асимптотики и при $\kappa \rightarrow 0$ $\Gamma_1(\kappa)$ стремится к конечному значению. Несовпадение наклонов Γ_0 и Γ_1 при больших κ^2 , по-видимому, обусловлено влиянием фактора e^{-2W} .

¹⁾ Эти предельные случаи были рассмотрены Г.К.Ивановым по нашей просьбе.

²⁾ Разложение экспериментальных спектров на составляющие велось по методу наименьших квадратов на ЭВМ с учетом функции разрешения кристаллического спектрометра, хорошо аппроксимируемой функцией Гаусса с $\Delta E/E \approx 0,04$. Толщина образца 0,5 мм. Температура образца $t = 25^\circ\text{C}$.

Из рис. 2 с помощью приведенных выше формул можно определить микродинамические параметры воды:

$D_1, \text{см}^2/\text{сек}$	$T_1, \text{сек}$	$T, \text{сек}$	γ	$\bar{\chi}$
$(0,8 \pm 0,1) \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-12}$	$2,2 \cdot 10^{-10}$	$0,96 \div 0,98$	60°

Видно, что скачкообразные перемещения относительно редки, а относительная вероятность переориентаций велика, следовательно, велика и роль вращательной диффузии. Другими словами, вращения изменяют коэффициент диффузии, с помощью которого описывается квазиупругое рассеяние нейтронов в области малых κ .

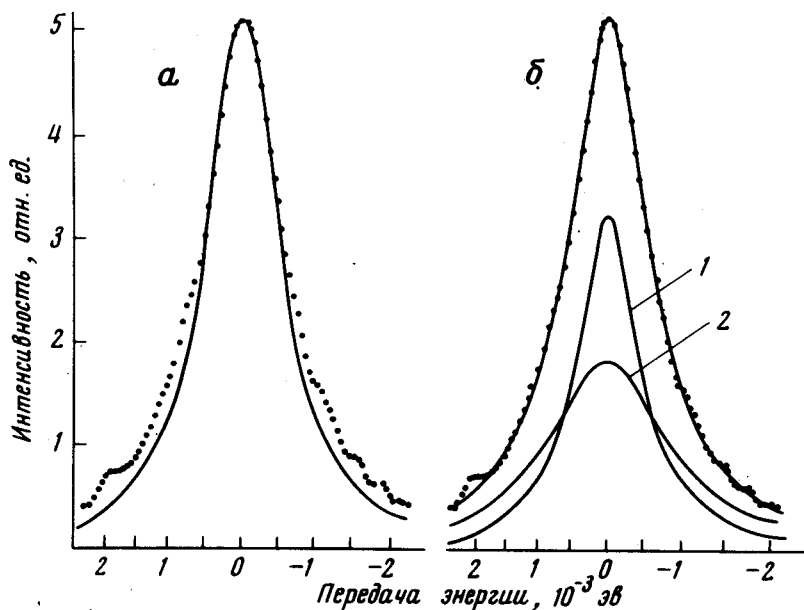


Рис. 1. Экспериментальные точки: *a* — функция Лоренца, наилучшим образом описывающая эксперимент; *b* — 1, 2 — функция Лоренца для $m = 0$ и $m = 1$ соответственно, — — — результирующая функция, наилучшим образом описывающая эксперимент

Большая величина T и малое значение коэффициента непрерывной диффузии D_1 , описывающего блуждания групп молекул, свидетельствует о квазикристалличности воды. Воспользовавшись формулой Стокса — Эйнштейна $D_1 = KT/6\pi\tau\eta$, связывающей коэффициент поступательной диффузии D_1 с вязкостью η и размером τ диффундирующей частицы, можно оценить размер таких групп. Он получается порядка $60 + 70 \text{ \AA}$. В некоторых работах, посвященных воде, обсуждается возможность существования подобных глобул, размер которых по оценкам $\sim 30 \text{ \AA}$ [6].

Таким образом, помимо удовлетворительного описания экспериментального спектра в целом метод, развитый Г.К.Ивановым, оказывает

ся более информативным не только в отношении микродинамических характеристик воды, но и ее структуры. Можно добавить, что при увеличении точности эксперимента возможно определение и функции пробега молекул α (κ).

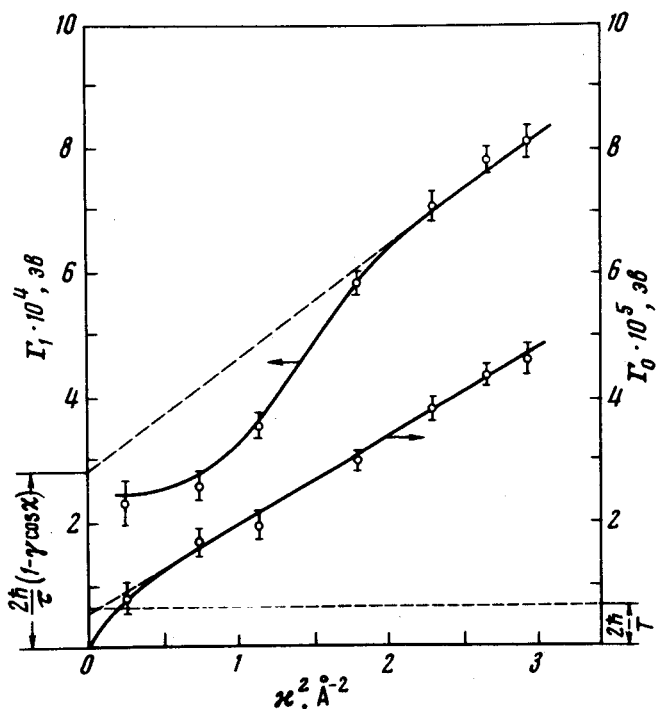


Рис. 2. Угловая зависимость ширины компонент

Мы благодарны Г.М.Драбкину за стимулирование интереса к работе, Г.К.Иванову и А.И.Сибилеву за плодотворное обсуждение результатов и критику, А.Ф.Щебетову и В.Н.Григорьеву за помощь в проведении эксперимента и его математической обработке.

Институт ядерной физики
им. Б.П.Константинова
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
13 января 1976 г.

Литература

- [1] D.J.Hyghes, H.Palevsky, W.Kley, E.Tunkelo. Phys. Rev., 119, 872, 1960.
- [2] K.E.Larsson, V.Dahlborg. Inelastic scattering of Neutrons, Proc. simp. Vienna, 1963, p. 317.
- [3] G.H.Vineyard. Phys. Rev. 110, 999, 1958; K.S.Singwi, A.Sjölander. Phys. Rev., 119, 863, 1960.
- [4] Г.К.Иванов. ЖЭТФ, 51, 1120, 1966.
- [5] Г.К.Иванов. ЖЭТФ, 50, 726, 1966.
- [6] P.A.Egelstaff. Advanc. Phys., 11, 203, 1962; S.R.Erlander. J.Macromol. Sci., A2, 595, 1968; Phys. Rev. Lett., 22, 177, 1969.