

ЗАВИСИМОСТЬ ДИФФУЗИИ И ТЕРМАЛИЗАЦИИ НЕЙТРОНОВ
ОТ АГРЕГАТНОГО СОСТОЯНИЯ СМЕСИ ПЕРЕКИСИ ВОДОРОДА С ВОДОЙ И ЛЬДОМ

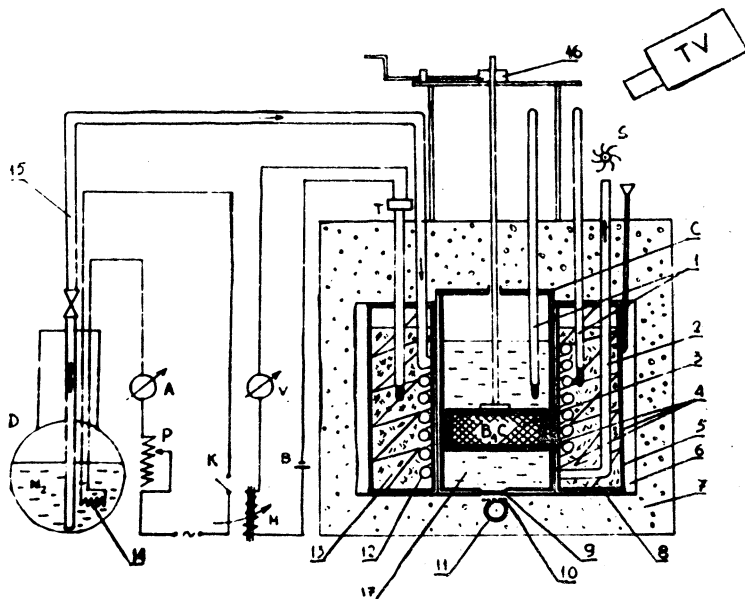
А. В. Антонов, Во-Дак-Банг, А. И. Исаков,
В. Н. Ковильников, В. И. Куликов, Ю. А. Меркульев

Влияние фазового состояния воды на процесс диффузии и термализации нейтронов исследуется уже длительное время. В работе /1/ (Антонов и др.) при фазовом переходе вода-лед был обнаружен скачок величины коэффициента диффузии тепловых нейтронов D и коэффициента диффузионного охлаждения C . В дальнейшем аналогичный результат был получен в работе /2/ (Длюуги и Кви-тек) и /3/ (Салайта). С другой стороны, в работе /4/ не был обнаружен разрыв в C , а в работе /5/ не наблюдалось скачкообразного изменения D .

До настоящего времени подобные исследования проводились для воды лишь при одной температуре — точке ее замерзания. Можно было бы уточнить результат, если бы удалось провести сравнение диффузионных параметров воды и льда при нескольких температурах, лежащих ниже 0°C , например, переохладив воду, однако это технически трудно осуществимо. С другой стороны, как известно, транспортное сечение в водородосодержащих веществах слабо зависит от структуры последних /7/.

Имея в виду вышесказанное, мы попытались внести ясность в вопрос о скачке в коэффициенте диффузии и следовательно, транспортном сечении в воде путем изучения диффузионных свойств 30% водного раствора перекиси водорода (H_2O_2), начинающего замерзать при -26°C и затвердевающего при -52°C /6/. При этом мы предполагали, что динамические свойства молекул H_2O_2 и H_2O , определяющие их взаимодействие с медленными нейтронами, не должны сильно отличаться, так как колебательные и вращательные уровни этих молекул лежат в одной и той же области энергии /6/.

Нами с помощью классического импульсного метода /8/ была изучена диффузия медленных нейтронов в 30% растворе H_2O_2 в области температур от $-196^{\circ}C$ до $+16^{\circ}C$ и в воде при комнатной



Р и с. 1. Схема экспериментальной установки. С - сосуд с исследуемой жидкостью (I7 - исследуемый объем замедлителя), Д - дьюар с хладагентом - жидким азотом, Т - контактный термометр, ТВ - телевизионная установка, I - ртутные термометры, 3 - поршень, 4 - кадмиевое покрытие, 5 - сосуд с тепловым "демпфером", 7 - криостат, 9 - фильтр из серебра, 10 - коллиматор, 11 - счетчик, 12 - нагревательная спираль, 15 - трубопровод, 16 - подъемный механизм.

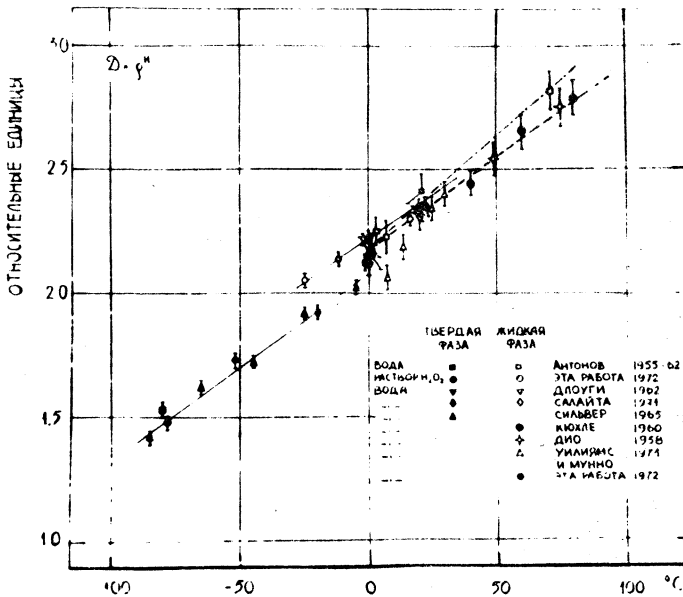
температуре. Измерения в воде носили контрольный характер, их результаты хорошо совпали с данными, известными из литературы. Методика эксперимента была, в принципе, эквивалентна описанной в работе /8/. Там же подробно описаны использованный в данной работе нейтронный импульсный генератор и электронно-измерительная аппаратура. Для целей эксперимента была разработана установ-

ка, показанная на рис. 1, которая позволяла изменять температуру исследуемого вещества, находящегося в сосуде С, в пределах от комнатной до -196°C и варьировать величину исследуемого объема вещества приблизительно от 6 до 1 л. Система термостатирования обеспечивала стабильность задаваемой температуры с точностью до $\pm 0,5^{\circ}\text{C}$. Принцип действия и устройство установки ясны из рис. 1. В работе использовался предложенный в /9/ метод, позволяющий исключать из результатов измерений искажающее влияние эффекта, связанного с существованием заметного пролетного расстояния от излучающей нейтроны поверхности до детектора. Обработка результатов измерений проводилась по методике, изложенной в работе /8/.

По найденным нами значениям коэффициентов диффузии для 30% раствора перекиси и величинам σ_{tr} для воды, взятым из литературы, были рассчитаны отношения $\sigma_{\text{tr}}(\text{H}_2\text{O})/\sigma_{\text{tr}}(\text{H}_2\text{O}_2)$. Расчет показал, что при всех температурах (за исключением температуры жидкого азота) это отношение близко к единице, если оба вещества находятся в одинаковом агрегатном состоянии. Средневзвешенное значение этого отношения для области температур от $+16^{\circ}\text{C}$ до -76°C составляет $\sigma_{\text{tr}}(\text{H}_2\text{O})/\sigma_{\text{tr}}(\text{H}_2\text{O}_2) = 1,01 \pm 0,01$. На рис. 2 представлена полученная зависимость величин ρ^{H} от температуры (ρ^{H} - плотность атомов водорода) для 30% раствора перекиси водорода и аналогичная зависимость для воды, рассчитанная по литературным данным. Из рис. 2 видно, что при положительных температурах, а также при температурах, меньших -26°C (но больших -196°C) данные для раствора перекиси, действительно, хорошо совпадают с величинами, полученными при измерениях с водой. Точки для перекиси водорода при температурах $0 > t > -26^{\circ}\text{C}$ лежат на одной прямой, являющейся как бы продолжением экспериментальной зависимости, наблюдающейся для воды и раствора H_2O_2 при более высоких температурах. С другой стороны, точки, полученные со льдом при тех же температурах, практически располагаются на параллельной прямой, сдвинутой вниз относительно первой на некоторую величину, которая и является мерой скачка параметра ρ^{H} при переходе от воды ко льду. По нашим оценкам величина

$$\text{скачка } R(D) = \frac{D_{\text{л}} \rho_{\text{л}}^{\text{H}}}{D_{\text{в}} \rho_{\text{в}}^{\text{H}}} = \frac{\sigma_{\text{tr}}^{\text{в}}}{\sigma_{\text{tr}}^{\text{л}}} = 0,94 \pm 0,01, \quad \text{что несколько мень-}$$

ше средневзвешенной величины, вычисленной на основании всех опубликованных работ $R(D) = 0,96 \pm 0,01$. Значки "л" и "в" указывают, что величины приведены для льда и воды соответственно.



Р и с. 2. Зависимость величины D^H_p от температуры.

Как известно, $\sigma_{ср} = \sigma_s (1 - \overline{\cos\theta})$, где σ_s - сечение рассеяния, а $\overline{\cos\theta}$ - средний косинус угла рассеивания нейтронов. В работе /10/ показано, что средний косинус при переходе от воды ко льду изменяется незначительно. Тогда можно считать, что разрыв в $\sigma_{ср}$ главным образом определяется разрывом в σ_s . Из наших данных можно, правда в весьма грубом приближении, оценить отношение эффективных масс, на которых, в заключительном этапе термализации, нейтрон рассеивается во льду и в воде. Сечение рассеяния нейтрона на протоне, абсолютно жестко связанном с массой $M_{\text{мол}}$, дается формулой: $\sigma = \sigma_{св} (\mu'/\mu)^2$, где $\mu' = m M_{\text{мол}} / (m + M_{\text{мол}})$, $\mu = m M / (m + M) \approx \frac{1}{2} m$, а m , $M_{\text{мол}}$ и M - соответственно масса нейтрона, эффективная масса, на которой он рассеивается, и масса

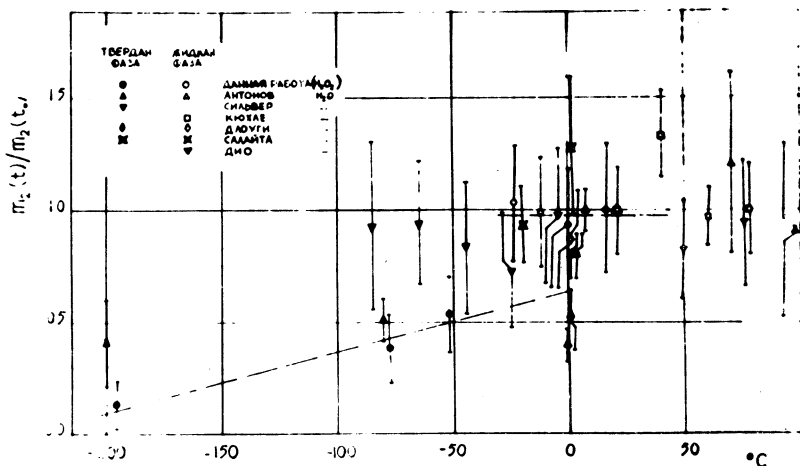
протона (рассеивающего ядра). $\sigma_{св}$ - сечение рассеяния медленного нейтрона на свободном протоне.

Если считать, что в воде $M_{\text{мол}} = 18m_p$, то из полученного значения $R(D)$ и вышеприведенной формулы следует, что во льду $M_{\text{мол}} \approx 48$, что примерно в 3 раза превышает массу молекулы воды. Вывод о том, что эффективная рассеивающая масса во льду заметно больше, чем в воде, качественно следует из того, что связь между молекулами воды в жидком состоянии значительно слабее, чем во льду, поскольку дебаевская температура для льда (-250°K) значительно выше, чем для воды (130°K).

Коэффициент диффузионного охлаждения C является параметром, значительно более чувствительным к структуре молекулы и агрегатному состоянию вещества, чем D . Поэтому естественно ожидать, что C в воде и перекиси водорода различаются, и что при замерзании этих веществ коэффициент C претерпевает разрыв. Соответственно аналогичное предположение справедливо и для параметра Нелкина μ_2 , характеризующего скорость обмена энергией между нейтронами и средой. Рассмотрим сначала вопрос о разрыве в C при переходе от воды ко льду. Суммируя результаты опубликованных работ, можно утверждать, что величина, характеризующая этот разрыв $R(C) = C_V (\rho_V^H)^3 / C_L (\rho_L^H)^3 = 1,43 \pm 0,27$.

Для раствора перекиси из наших измерений следует, что $R(C) = 1,35 \pm 0,30$. Таким образом, наличие разрыва в величине $R(C)$ для воды, по-видимому, не может вызывать сомнения. Хотя возможно, что величина этого разрыва несколько преувеличена, поскольку в цитированных работах не принимались меры для компенсации эффекта, связанного с наличием пролетного расстояния от излучателя до детектора. В перекиси такой разрыв, как показывает наш эксперимент, также существует. На рис. 3 представлены в функции температуры значения параметра Нелкина μ_2 для воды и смеси перекиси водорода с H_2O . Из рассмотрения рис. 3 видно, что μ_2 при фазовом переходе в воде испытывает скачок, что свидетельствует об уменьшении скорости обмена энергией между нейтронами и водой при ее замерзании. При повышении температуры воды μ_2 , по-видимому, медленно растет, а при понижении температуры льда почти не изменяется. Параметр μ_2 в перекиси водорода при переходе от жидкого состояния ($t > -26^\circ\text{C}$) к твердому ($t < -52^\circ\text{C}$) тоже испытывает за-

метное изменение, но меньше, чем в воде. При понижении температуры затвердевшего раствора перекиси параметр m_2 уменьшается, что говорит об уменьшении скорости обмена энергией между нейтронами и льдом из раствора перекиси водорода.



Р и с. 3. Зависимость величины $m_2(t)/m_2(t_0)$ от температуры. Для 30% раствора перекиси водорода $t_0 = +16^\circ\text{C}$, для воды $t_0 = +20^\circ\text{C}$.

Найденные нами в результате эксперимента значения D и C для 30% раствора перекиси водорода аппроксимированы полиномами. В жидкой фазе

$$D[T'(^{\circ}\text{K})] = \left\{ (31,5 \pm 0,9)10^3 + (146 \pm 4) \times T'(^{\circ}\text{K}) - (0,58 \pm 0,02) \times (T')^2(^{\circ}\text{K}) \right\} \text{ см}^2/\text{сек},$$

$$C[T'(^{\circ}\text{K})] = \left\{ (5,5 \pm 1,5)10^3 + (0,6 \pm 0,2)10^2 \times T'(^{\circ}\text{K}) \right\} \text{ см}^4/\text{сек},$$

$$T'(^{\circ}\text{K}) = T(^{\circ}\text{K}) - 249^{\circ}\text{K}.$$

В твердой фазе

$$D(T'^{\circ}\text{K}) = \left\{ (11,6 \pm 0,4)10^3 + (101 \pm 3) \times T'^{\circ}\text{K} \right\} \text{ см}^2/\text{сек};$$

$$T' = T^{\circ}\text{K} - 73^{\circ}\text{K}.$$

Параметр C почти не меняется с температурой и колеблется около среднего значения (7400 ± 2000) см⁴/сек.

Полученная из эксперимента величина $\sigma_a^H = (326 \pm 4)$ мб.

Поступила в редакцию

24 мая 1972 г.

Л и т е р а т у р а

1. А. В. Антонов и др. Атомная энергия, 13, 373 (1962).
2. Z. Dlouhy, J. Kvittek. Reactor Sci. Technol., 16, 376 (1962).
3. G. N. Salaita. Nucl. Sci. Eng., 46, 214 (1971).
4. E. G. Silver. Nucl. Sci. Eng., 34, 275 (1968).
5. P. M. Williams, F. J. Munno. Nucl. Sci. Eng., 43, 120 (1971).
6. У. Шамб, Ч. Сеттерфильд, Р. Вентворс. Перекись водорода. Изд. ИЛ. М., 1958 г.
7. L. Pa'l, Kisdı-Koszo' et al. Proc. 3 rd UN Int. Conf. PUAE, 1964, P/651; L. Pa'l et al. Pulsed neutron reseach, Proc. Symp. Karlsruhe, May 1965.
8. А. В. Антонов и др. Атомная энергия, 12, 22 (1962).
9. А. В. Антонов и др. Краткие сообщения по физике № I, 58 (1971).
10. C. Reinsch, T. Springer. Z. Naturforschung, 16a, 1 (1961).
11. M. Melkin. J. Nucl. Energy, 8, 48 (1958).
12. M. Kühle. Nucl. Sci. Eng., 8, 88 (1960).
13. W. H. Dio. Nukleonik, 1, 13 (1958).