

НЕСТАЦИОНАРНАЯ ДИФфуЗИЯ И ТЕРМАЛИЗАЦИЯ НЕЙТРОНОВ
В ПОЛИСИЛОКСАНЕ ПРИ ТЕМПЕРАТУРАХ 293+500°K

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

Кремнеорганические полимеры, в частности полисилоксановые жидкости, весьма термостойки, индифферентны по отношению ко многим химическим веществам, имеют уникальные реологические свойства. Вследствие этого они находят широкое применение в различных областях науки и техники, в частности, в нейтронной физике и атомной энергетике. Например, в работах /1/ и /2/ предлагалось использовать кремнеорганические соединения в качестве так называемого источника "горячих" нейтронов и для высокотемпературной защиты. Однако до настоящего времени взаимодействие медленных нейтронов с кремнеорганическими соединениями изучено недостаточно. В частности, не изучена термализация нейтронов и неизвестны такие важные ядерно-физические характеристики, как время жизни нейтронов в бесконечной среде $(\Sigma_a v)^{-1}$, коэффициент диффузии D , коэффициент диффузионного охлаждения C . Использование этих веществ в реакторных системах требует знания указанных параметров для широкого диапазона температур. Изучение кремнеорганических жидких полимеров представляет также большой научный интерес вследствие своеобразной структуры их макромолекул, которые, как полагают /3/, при низких температурах свертываются в клубки и распрямляются при более высоких температурах.

Данная работа посвящена изучению взаимодействия медленных нейтронов с одним из представителей класса жидких кремнеорганических полимеров - полиэтилсилоксановой жидкостью $[SiO(C_2H_5)_2]_{x-2} \times 2[(C_2H_5)_3SiO_{1/2}]$ в диапазоне температур от 293 до 500°K.

В нашем случае среднее число звеньев в полимерной цепи x было близко к II.

Эксперимент проводился по классическому варианту импульсного метода /4/. Практически этот метод сводится к облучению короткими импульсами нейтронов разных объемов замедлителя с последующей регистрацией в функции времени интенсивности вытекающих из них медленных нейтронов. Как показывает диффузионная теория, интенсивность этих нейтронов затухает экспоненциально: $\sim \exp(-\lambda t)$. Декремент затухания

$$\lambda = \overline{\Sigma_a v} + DV^2 - cV^4 + \dots \quad (I)$$

В этой формуле и в дальнейшем используются общепринятые обозначения. V^2 - "баклинг" системы - наименьшее собственное значение оператора Лапласа для экстраполированных, т.е. увеличенных на $0,71\lambda_{tr}$, размеров замедлителя (λ_{tr} - транспортный пробег нейтронов в данном веществе). Из набора измеренных значений $\lambda(V^2)$ определяются параметры диффузии.

В работе использовалась методика, разработанная авторами при аналогичных исследованиях с водой и жидким водородом /5,6/. В изготовленной установке полиэтиленоксид заливался в кадмиевый сосуд, разделенный по высоте поршнем, поглощающим нейтроны. Рабочим объемом служила часть жидкости, находящаяся под поршнем. Ее величина изменялась при перемещении поршня. В кадмиевом покрытии дна сосуда была сделана прорезь - "маска", под которой размещался счетчик нейтронов СМ-17, охлаждаемый принудительной циркуляцией воздуха. Форма "маски" выбиралась из условия наилучшего подавления нечетных радиальных гармоник плотности нейтронов /7/. Электрическое нагревательное устройство позволяло менять температуру жидкости (которая регистрировалась термопарой с точностью до $\pm 2^\circ$) в диапазоне от 293°K до 550°K . Для предотвращения окисления изучаемой жидкости над ее поверхностью создавался ток CO_2 таким образом, чтобы давление этого газа над поверхностью жидкости на 3-5 мм.рт.ст. превышало атмосферное.

Из соображений теплоизоляции счетчик нейтронов был размещен на расстоянии 3 - 3,5 см от излучающей нейтроны поверхности. Для компенсации эффекта пролетного расстояния, искажающего значения λ , был применен разработанный авторами метод /8/.

В соответствии с этим методом детектор был покрыт слоем серебра толщиной в 2 мм, что гарантировало компенсацию искажений при $\lambda \leq 55000 \text{ см}^{-1}$.

Величины λ были измерены для 11 значений v^2 (лежащих в интервале $0,087 - 0,65 \text{ см}^{-2}$) при 6 значениях температур: 293, 300, 350, 400, 450, 500°К .

Таблица I

Температура, $^\circ\text{К}$	$\overline{\Sigma_a v}$, 10^{-3} сек^{-1}	D , $10^{-4} \text{ см}^2/\text{сек}$	C , $10^{-3} \text{ см}^4/\text{сек}$	$\lambda_{\text{тг}}$, см	L , см
293	$4,66 \pm 0,04$	$3,55 \pm 0,07$	$2,1 \pm 0,5$	$0,429 \pm 0,008$	$2,76 \pm 0,04$
300	$4,61 \pm 0,04$	$3,63 \pm 0,08$	$2,2 \pm 0,6$	$0,434 \pm 0,009$	$2,81 \pm 0,04$
350	$4,43 \pm 0,04$	$4,25 \pm 0,09$	$2,8 \pm 0,8$	$0,470 \pm 0,010$	$3,10 \pm 0,05$
400	$4,32 \pm 0,05$	$4,99 \pm 0,13$	$3,9 \pm 1,1$	$0,517 \pm 0,013$	$3,30 \pm 0,06$
450	$4,09 \pm 0,05$	$5,94 \pm 0,16$	$5,7 \pm 1,9$	$0,580 \pm 0,016$	$3,81 \pm 0,08$
500	$3,98 \pm 0,07$	$6,90 \pm 0,21$	$7,6 \pm 2,1$	$0,639 \pm 0,019$	$4,16 \pm 0,10$

Для каждой температуры методом наименьших квадратов (МНК) по соотношению (I) были определены диффузионные параметры, приведенные в табл. I. Там же приведены значения $\lambda_{\text{тг}}$ и длины диффузии, рассчитанные по элементарным формулам. Из экспериментальных значений $\overline{\Sigma_a v}$, D , C посредством МНК найдены следующие формулы, задающие зависимость этих параметров от температуры $t(^\circ\text{C})$:

$$\overline{\Sigma_a v}(t) = 4710 - 2,99t - 5,9 \cdot 10^{-3}t^2 + 0,22 \cdot 10^{-4}t^3, \quad (2)$$

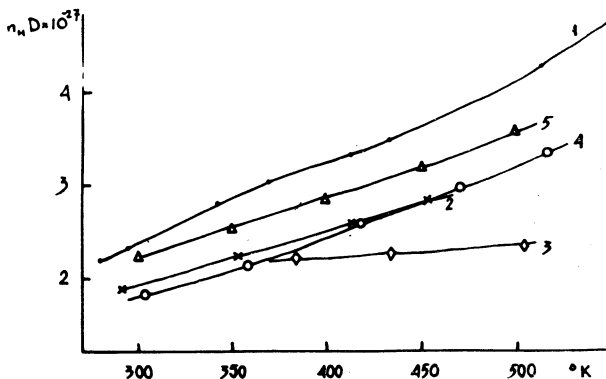
$$D(t) = 3,38 \cdot 10^4 + 76,3t + 0,494t^2 - 0,65t^3, \quad (3)$$

$$C(t) = 1900 + 5t + 0,09t^2. \quad (4)$$

Максимальные отклонения значений $\overline{\Sigma_a v}$, D , C от экспериментальных, вычисленные по ϕ -лам (I), (2), (3), не превышают 0,9%, 0,6% и 10% соответственно. Исходя из значений $\overline{\Sigma_a v}$ и плотности жидкости, даваемых формулой /9/:

$$\rho = \rho_0 - \gamma(T - 300) \quad (5)$$

(для $\kappa = 11$ $\rho_0 = 0,973$ г/см³, $\chi = (6,99 \pm 0,01) \cdot 10^{-4}$ г/см³ °К), с учетом поглощения нейтронов кремнием было определено эффективное сечение поглощения нейтронов атомом водорода $\sigma_a = 332,0 \pm 2,0$ мбн. Это значение находится в хорошем согласии со средней величиной, известной из литературы: $\sigma_a = 331,5 \pm 1,7$ мбн /10/.



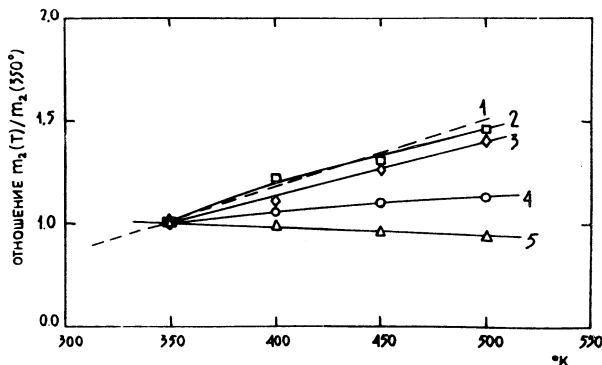
Р и с. I. Зависимость величины Dn_H от температуры. 1 — вода; 2 — даутерм А; 3 — $C_{13}H_{12}$; 4 — $C_{15}H_{16}$; 5 — полиэтилсилоксан.

Интересно отметить, что исходя из значений σ_a и измеренных величин $\overline{\Sigma_a v}$ в предположении поглощения нейтронов по закону $1/v$, можно определить зависимость плотности полиэтилсилоксана от температуры. Получаемая для ρ зависимость хорошо описывается формулой, аналогичной (5), со значением $\chi = (7,00 \pm 0,05) \cdot 10^{-4}$ г/см³ °К, близким к приведенному выше.

На рис. I приведена зависимость величины Dn_H от температуры, рассчитанная по экспериментальным данным. Объемная концентрация атомов водорода в полисилоксане n_H определялась на основании химического состава и плотности. На этом же рисунке для сравнения приведены аналогичные величины для воды и некоторых органических соединений, взятые из /II/. Из анализа рис. I можно заключить, что в полиэтилсилоксане, как и в углеводородах, Dn_H растет с температурой быстрее, чем \sqrt{T} , что свидетельствует о зависимости σ_{tr} от температуры. Однако эта зависимость проявляется слабее, чем в случае воды. Было найдено, что зна-

чения σ_{tr} , полученные из экспериментальных величин D , хорошо описывается законом $\sigma_{tr} \sim E^{-\alpha}$ при $\alpha = 0,43 \pm 0,02$ (для воды значение α близко к $0,5$ /5/).

Используя приближение Нелкина /12/ и имея ввиду найденное



Р и с. 2. Зависимость отношения $m_2(T)/m_2(350^\circ K)$ от температуры. 1 - вода; 2 - $C_{14}H_{30}$; 3 - $C_{13}H_{12}$; 4 - $C_{15}H_{16}$; 5 - полиэтилсилоксан.

значение α , нетрудно получить величину

$$m_2(T) = M_2(T)/n_H, \quad (6)$$

где $M_2 = 1/(kT)^2 \iint (E - E')^2 \sigma_s(E \rightarrow E') M(E) dE dE'$,

характеризующую средний квадрат переноса энергии. В выражении (6) $\sigma_s(E \rightarrow E')$ - ядро рассеяния, $M(E)$ - максвелловское распределение нейтронов по энергии. На рис. 2 нанесены значения этой величины, отнесенные к $m_2(T_0)$, где $T_0 = 350^\circ K$. Из рис. 2 следует, что $m_2(T)/m_2(T_0)$ наиболее слабо зависят от температуры для полисилоксана. Это явление, как нам кажется, связано с особенностями структуры этой жидкости. Его можно, по-видимому, объяснить следующим образом. При повышении температуры происходит распрямление в линейной цепи молекул, свернутых в клубки, упаковка полимера становится более компактной, возрастает межмолекулярное взаимодействие и, как следствие этого, увеличивается заторможенность низкоэнергетических колебательных и

вращательных степеней свободы молекул. Наряду с этим, при повышении температуры замедлителя возрастает средняя энергия нейтронов, и вероятность возбуждения низкоэнергетических уровней молекулы тоже увеличивается. Конкуренция этих двух процессов и приводит к тому, что средний квадрат энергии обмена m_2 с ростом температуры почти не возрастает. Такое объяснение соответствует существующей гипотезе о строении данного полимера, а также экспериментальным данным об аномально слабой зависимости вязкости этой жидкости от температуры. В свете изложенного значительный интерес представляет изучение взаимодействия с медленными нейтронами таких силоксановых жидкостей, у которых молекулы слабо свернуты в клубки (например, фенилсодержащих полисилоксанов).

Поступила в редакцию
27 декабря 1971 г.

Л и т е р а т у р а

1. А. Мичаудон. Оптимизация нейтронных пучков. Атомиздат, М., 1965 г., стр. 38.
2. N. Hodge, R. Sowden. *Nucleonics*, 19, 158 (1961).
3. Неорганические полимеры (под ред. Ф. Стоуна). "Мир", М., 1965 г.
4. K. H. Beekartz. *Pulsed neutron research*, v. I, p 12 (1965).
5. А. В. Антонов и др. *Атомная энергия*, 12, 22 (1962); 13, 373 (1962).
6. А. В. Антонов и др. *Краткие сообщения по физике* № I, 50 (1970).
7. G. von Dardel, N. Sjöstrand. *Phys. Rev.*, 96, 1245 (1954).
8. А. В. Антонов и др. *Краткие сообщения по физике* № I, 58 (1971).
9. В. Г. Немзер, Д. Л. Расторгуев. *Пластические массы*, 7, 19 (1969); 1, 14 (1970).
10. A. R. Baker, D. H. Wilkinson. *Phil. Mag.*, 2, 647 (1968).
11. Л. Н. Дрова. *Сб. труды всесоюзной летней школы физиков*, Обнинск, 1967 г., том 2, стр. 151, 1969 г.
12. M. S. Nelkin. *J. Nucl. Energy*, 8, 48 (1958).