

## ПОЛНАЯ ВЕРОЯТНОСТЬ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ УЛЬТРАХОЛОДНЫХ НЕЙТРОНОВ В ГРАФИТЕ

А. С. Герасимов, М. В. Казарновский

1. Важной характеристикой взаимодействия медленных нейтронов с веществом является  $w_0 = \lim_{v \rightarrow 0} (v \Sigma)$  - полная вероятность взаимодействия при стремлении скорости  $v$  нейтронов к нулю ( $\Sigma$  - полное макроскопическое сечение). Эта величина равна нижней границе непрерывной части спектра собственных значений уравнения переноса нейтронов. Кроме того, она определяет поток ультрахолодных нейтронов через границу среды /1/. Однако для графита - одного из основных замедлителей теоретические оценки  $w_0$  довольно неопределенны и плохо согласуются с экспериментальными данными (см. табл. 1). В настоящей работе обсуждаются возможные причины такого разногласия.

2. При малых скоростях нейтрона вероятность упругого рассеяния обращается в нуль (из-за стремления к нулю фазового объема, характеризующего плотность конечных состояний), а вероятность поглощения  $w_c$  обычно хорошо известна (как правило, она не зависит от скорости; для графита  $w_c = 70 \text{ сек}^{-1}$  /2/). Соответственно, для определения  $w_0$  достаточно найти вероятность неупругого рассеяния  $w_{in}(v)$  при  $v \rightarrow 0$ .

В случае тяжелых (массовое число  $A \gg 1$ ) поликристаллических веществ\*)  $w_{in}$  можно представить в

\*) В теории переноса нейтронов этот случай наиболее важен, так как  $w_0$  мала (порядка  $1/A$ ), и спектр собственных значений  $\lambda$  уравнения переноса может оказаться пустым в области  $\lambda < w_0$ , как это имеет место для малых объемов бериллия и графита (см., например, /3/).

Таблица 1

Значения  $w_0$  для графита при комнатной температуре

Метод анализа экспериментальных данных или расчета; ссылка	$w_0, 10^{-3} \text{ сек}^{-1}$
Эксперимент; экстраполяция по формуле (4), (5) данных о полных сечениях к энергии, равной нулю, от $0,4 \cdot 10^{-3} \text{ эв}$ /2/	2,5-3,0
Эксперимент; экстраполяция по формуле (4), (5) данных о полных сечениях к энергии, равной нулю, от $10^{-3} \text{ эв}$ /4/	7+10
Расчет по модели Паркса в некогерентном приближении /5/	1,1
Расчет в "доплеровском" некогерентном приближении /6/	2,1
Расчет в дебаевском некогерентном приближении /7/	0,418
Расчет по модели Игелстаффа ( $T_2=300^\circ\text{K}$ , $T_3=2100^\circ\text{K}$ ) в некогерентном приближении /7/	1,5
Расчет по модели Игелстаффа ( $T_2=100^\circ\text{K}$ , $T_3=2100^\circ\text{K}$ ) в некогерентном приближении /7/	2,4
Расчет Кона в некогерентном приближении /8/	1,2
Расчет Кона с учетом когерентных эффектов /8/	1,8
Расчет в некогерентном приближении по формуле (3)	1,1

виде разложения в ряд по степеням  $1/A$ . Рассмотрим сначала первый член такого разложения, а в дальнейшем обсудим возникающую при этом ошибку.

Большинство теоретических расчетов [5-7] было выполнено в некогерентном приближении. Согласно этому приближению,  $w_{in}(v)$  при  $v \rightarrow 0$  в первом порядке по  $1/A$  имеет вид (см., например, [9])

$$w_{in}(0) = \frac{\Sigma_b}{A} \sqrt{\frac{2\hbar}{m}} \int_0^{\infty} d\omega \frac{\nu(\omega)\sqrt{\omega}}{\exp(\hbar\omega/kT) - 1}, \quad (1)$$

где  $\Sigma_b$  - полное макроскопическое сечение рассеяния нейтронов на изолированных связанных атомах замедлителя,  $T$  - температура,  $m$  - масса нейтрона,  $\nu(\omega)$  - нормированный на единицу спектр частот собственных колебаний кристаллической решетки замедлителя. Таким образом, для теоретического расчета  $w_{in}(0)$  в этом приближении необходима информация о  $\nu(\omega)$ . Эта информация может быть получена, например, из анализа данных о молярной теплоемкости кристаллической решетки при постоянном объеме  $C_{VL}$ , поскольку (в гармоническом приближении)

$$C_{VL}(T) = N_A \frac{d\mathcal{E}(T)}{dT} = 3N_A \frac{d}{dT} \int_0^{\infty} d\omega \frac{\nu(\omega)\hbar\omega}{\exp(\hbar\omega/kT) - 1}, \quad (2)$$

где  $\mathcal{E}$  - внутренняя энергия колебаний кристаллической решетки, отнесенная к одному атому,  $N_A$  - число Авогадро. Поэтому стандартный метод проведения подобных расчетов состоял в восстановлении  $\nu(\omega)$  из данных о теплоемкости и последующей подстановке этого спектра в (1). Однако, как видно из табл. 1, такая процедура приводит к неоднозначным результатам, так как при восстановлении  $\nu(\omega)$  возникают значительные трудно контролируемые ошибки [10,11].

3. Величина  $w_{in}(0)$  может быть непосредственно выражена через интегралы от теплоемкости по температуре без промежуточного восстановления  $\nu(\omega)$ , что

позволяет определить ошибку расчета. А именно, с помощью метода, изложенного в ранней работе /12/, можно показать, что из (1) и (2) следует соотношение ( $k = N_A k$ )

$$w_{in(0)} = \frac{\Sigma_b v_M}{AR} \int_0^1 dx \sqrt{1/x - 1} \sum_{q=1}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{q}} C_{VL} \left( \frac{T}{q} x \right) \sum_{n/q} \frac{\mu_n}{\sqrt{n}}, \quad (3)$$

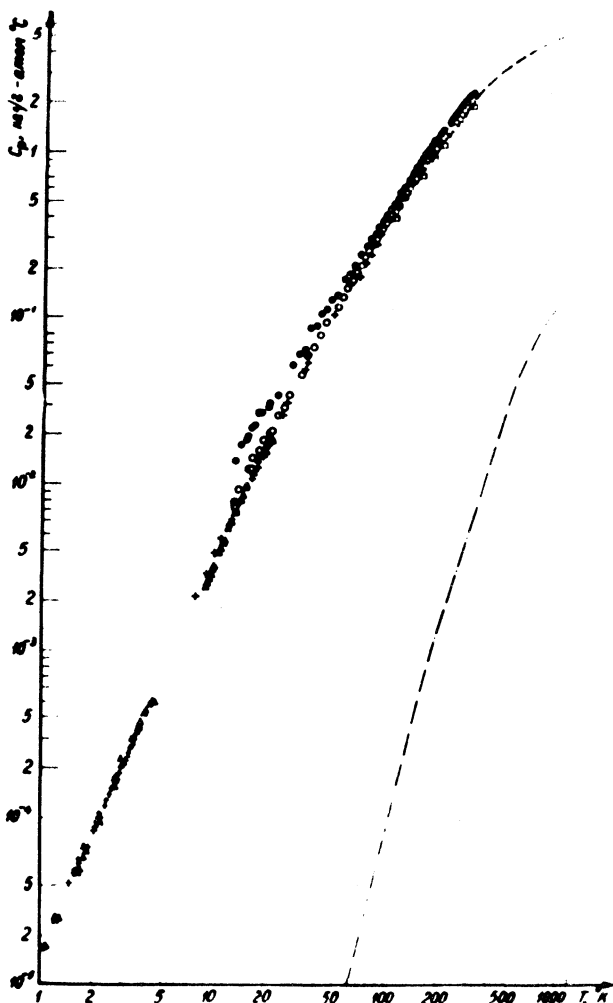
где  $v_M = \sqrt{8kT/\pi m}$  - средняя скорость максвелловских нейтронов, а коэффициенты  $\mu_n$  имеют вид

$$\mu_n = \begin{cases} 1, & \text{если } n = 1, \\ (-1)^{l-1}, & \text{если } n - \text{произведение } l \text{ различных} \\ 0 & \text{простых чисел,} \\ & \text{во всех остальных случаях;} \end{cases}$$

символ  $\sum_{n/q}$  означает суммирование по всем целым числам  $n$ , являющимися делителями числа  $q$ .

Экспериментальные данные о теплоемкости  $C_p$  графита при постоянном давлении /13-18/ приведены на рис. 1. Отклонение  $C_V$  (теплоемкости при постоянном объеме) от  $C_p$  можно оценить по известной формуле  $C_p - C_V = A_0 C_p^2 T^3$ , где для графита  $A_0 = 4,8 \cdot 10^{-6}$  моль/кал /19/. Это отклонение очень мало и лежит в пределах точности данных о  $C_p$  (см. рис. 1). Вклад электронной теплоемкости в  $C_p$  также можно считать пренебрежимо малым /20/. Учет эффектов ангармонизма в теплоемкости в общем случае сложен и ненадежен. Однако различные количественные оценки соответствующих поправок, как правило, не превышают нескольких процентов /21/.

Как видно из рис. 1, теплоемкости графитов разного сорта несколько отличаются. Однако эти отличия заметны лишь в области относительно низких температур ( $< 30^\circ K$ ), которая в нашем расчете дает малый вклад, и не влияют на окончательные результаты. Исключение составляет облучение графита мощным потоком нейтронов, вызывающее существенное увеличение



Р и с. 1. Молярная теплоемкость графита. Экспериментальные данные для одного и того же сорта графита: о - необлученного /13/, • - облученного потоком  $1,5 \cdot 10^{21}$  нейтронов/см<sup>2</sup> /14/. Данные для других сортов графита:  $\Delta$  - /15/,  $\square$  - /16/, + - /17/; пунктир - расчет по эмпирической формуле /18/; штрих-пунктир - график разности  $C_p - C_v$  (при  $T < 60^\circ\text{K}$  заведомо выполняется неравенство  $C_p - C_v < 7 \cdot 10^{-4} C_p$ ).

теплоемкости /14/. Ниже мы ограничимся случаем необлученного графита.

4. Расчет по формуле (3) для графита плотностью  $1,7 \text{ г/см}^3$  ( $\Sigma_b = 0,47 \text{ см}^{-1}/2$ ) с использованием экспериментальных данных о  $C_p/13, 15-18/$  при  $T = 300^\circ\text{K}$  дает  $w_{in}(0) = 1060 \pm 60 \text{ сек}^{-1}$ , откуда  $w_0 = 1130 \pm 60 \text{ сек}^{-1}$ . Экспериментальные данные о полных нейтронных сечениях относятся к сравнительно большим энергиям ( $\geq 10^{-1} \text{ эв}$ ) и ниже брегговской границы сильно различаются у разных авторов /2,4/. Для их экстраполяции к нулевой энергии рассмотрим зависимость  $w_{in}$  от  $v$  при малых скоростях. Можно показать, что в первом приближении по  $1/A$

$$w_{in}(v) = w_{in}(0) + \alpha v^2 + \beta v^4 + \dots, \quad (4)$$

где коэффициенты  $\alpha$  и  $\beta$  могут быть выражены через интегралы от теплоемкости аналогично  $w_{in}(0)$ . . . А именно,

$$\alpha = \frac{5}{6} \frac{\Sigma_b v_M}{AR} \frac{m}{kT} \int_0^1 dx \sqrt{\frac{1}{x} - 1} \left( \frac{2}{x} - 1 \right) \sum_{q=1}^{\infty} \frac{1}{q^{5/2}} C_{VL} x \times \left( \frac{T}{q} x \right) \sum_{n/q} \frac{\mu_n}{n^{3/2}}, \quad (5)$$

$$\beta = \frac{7}{120} \frac{\Sigma_b v_M}{AR} \left( \frac{m}{kT} \right)^2 \int_0^1 dx \sqrt{\frac{1}{x} - 1} \left( \frac{2}{x^2} - \frac{4}{x} + 1 \right) x \times \sum_{q=1}^{\infty} \frac{1}{q^{5/2}} C_{VL} \left( \frac{T}{q} x \right) \sum_{n/q} \frac{\mu_n}{n^{5/2}}.$$

Для графита при  $T = 300^\circ\text{K}$  имеем:  $\alpha = 6,8 \cdot 10^{-8} \text{ сек/см}^2$ ;  $\beta = 5,7 \cdot 10^{-18} \text{ сек}^3/\text{см}^4$ .

При энергии нейтронов  $10^{-3}$  эв величина  $\alpha v^2 + \beta v^4$  составляет всего  $150 \text{ сек}^{-1}$ . Результаты экстраполяции экспериментальных данных с помощью формулы (4) приведены в табл. 1. Видно, что экспериментальное значение  $w_0$  минимум в два раза превосходит рассчитанное по формуле (3).

5. Рассмотрим возможные причины такого разногласия.

а) Поправки высшего порядка по  $1/\Lambda$  к формуле (3).

Согласно общей теории рассеяния нейтронов в кристаллах, поправка второго порядка к  $w_{\text{in}}(0)$  в пренебрежении эффектами анизотропии рассеяния может быть представлена в виде  $\Delta w_{\text{in}} = w_1 - w_2$ , где

$$w_1 = 2\sqrt{2} \frac{\Sigma_b}{\Lambda^2} \sqrt{\frac{\hbar}{m}} \int_0^\infty \frac{d\omega \nu(\omega)}{\omega [\exp(\hbar\omega/kT) - 1]} \int_0^\infty \frac{d\omega' \nu(\omega')}{\omega' [\exp(\hbar\omega'/kT) - 1]} \times \left[ (\omega + \omega')^{5/2} + e^{-\frac{\hbar\omega'}{kT}} (\omega - \omega')^{5/2} \right], \quad (6)$$

$$w_2 = 2\sqrt{2} \frac{\Sigma_b}{\Lambda^2} \sqrt{\frac{\hbar}{m}} \int_0^\infty \frac{d\omega \nu(\omega) \omega^{3/2}}{\exp(\hbar\omega/kT) - 1} \left\{ 2 \int_0^\infty \frac{d\omega' \nu(\omega')}{\omega' [\exp(\hbar\omega'/kT) - 1]} + \int_0^\infty \frac{d\omega' \nu(\omega')}{\omega'} \right\}.$$

Величину  $w_2$  также можно выразить через интегралы от теплоемкости:

$$w_2 = \frac{\Sigma_b v_M}{\Lambda^2 R^2} \int_0^1 dx \left( \frac{x}{1-x} \right)^{1/2} \sum_{n=1}^\infty \frac{1}{n^{3/2}} C_{VL} \times$$

$$\begin{aligned}
 & \times \left( \frac{T}{n} x \right) \sum_{q/n} \sqrt{q} \mu_q \left\{ \frac{3T}{x^2} \int_0^{\infty} C_{VL}(t) \frac{dt}{t^2} + \right. \\
 & \left. + \int_0^1 dx' \left( \frac{1}{x'} - 1 \right)^2 \sum_{n'=1}^{\infty} n' C_{VL} \left( \frac{T}{n'} x' \right) \sum_{q'/n'} \frac{1}{q'} \mu_{q'} \right\}. \quad (7)
 \end{aligned}$$

Точный расчет  $w_1$  провести нельзя, если  $\mathcal{V}(\omega)$  неизвестен. Однако можно показать, что  $w_1$  заведомо меньше  $2\sqrt{2} w_2$ , т.е.  $-w_2 < \Delta w_{in} < (2^{3/2} - 1)w_2$ . Соответственно, для графита имеем:  $-120 \text{ сек}^{-1} < w_{in} < 420 \text{ сек}^{-1}$ . Таким образом, эта поправка относительно невелика. Качественный анализ поправок более высокого порядка по  $1/\lambda$  показывает, что они вряд ли могут заметно изменить эту оценку. Эффект анизотропии рассеяния можно грубо (причем завышено) учесть, полностью пренебрегая химической связью атомов вдоль кристаллической оси, нормальной к плоскости гексагонов. Как легко показать, найденная выше поправка при этом увеличится в 1,2 раза.

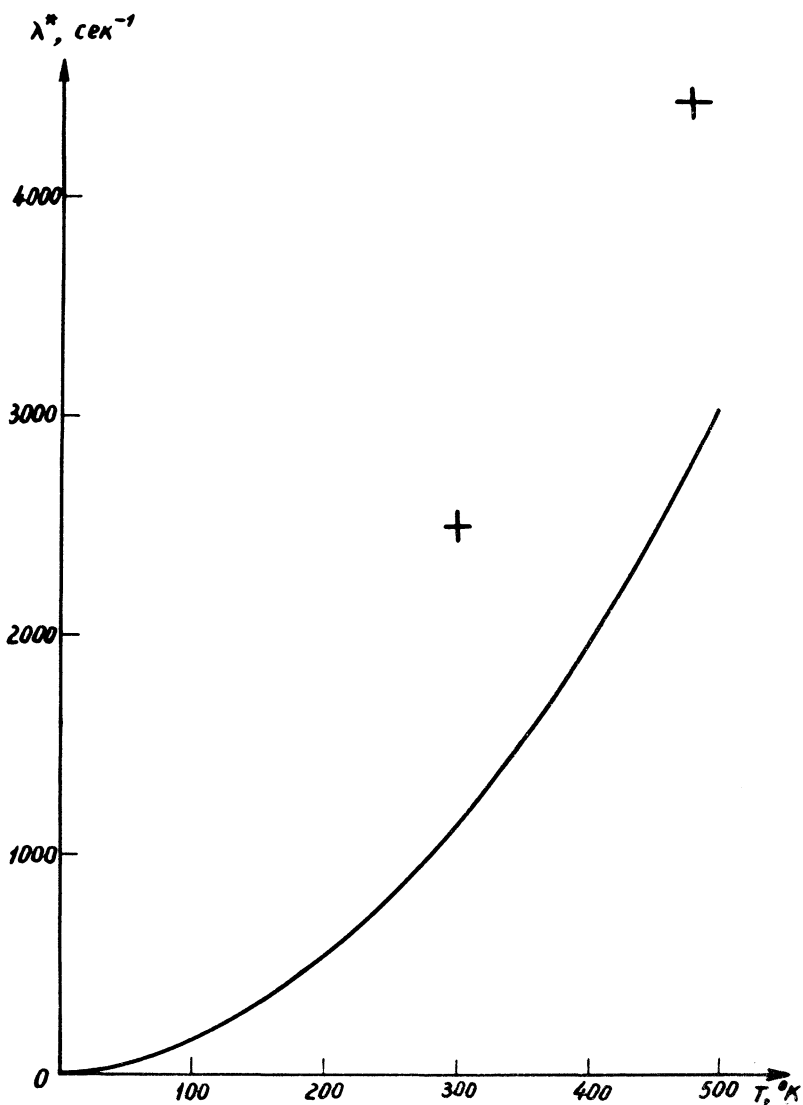
#### б) Когерентные эффекты.

Вклад когерентного рассеяния в полное сечение графита для холодных нейтронов довольно сильно зависит от закона дисперсии колебаний кристаллической решетки. Так, в рамках модели Крамхансла-Брукса этот вклад составляет 23% /22/, а Кону /8/ удалось подобрать модель, в которой он значительно больше (см. табл.).

#### в) Упругое рассеяние.

В идеальных когерентно рассеивающих кристаллах вероятность упругого рассеяния  $w_{el}$  при энергиях, меньших границы Брегга, равна нулю. Однако не исключено, что в графите при энергиях, при которых проводились измерения, может быть интенсивное упругое рассеяние нейтронов за счет неоднородностей кристаллической решетки (пор, малых размеров кристаллитов и т.д.). Количественно оценить  $w_{el}$  за счет





Р и с. 2. Зависимость  $W_0$  для графита от температуры: сплошная кривая - расчет по формуле (3), 0 - экспериментальные данные [2], экстраполированные к энергии, равной нулю, по формуле (4), (5).

этих эффектов, по-видимому, трудно. Некоторым аргументом в пользу предположения о заметном вкладе  $w_{el}$  в полную вероятность рассеяния при малых энергиях может служить тот факт, что разность "экспериментальных" и теоретических (рассчитанных по формуле (3)) значений  $w_0$  слабо зависит от температуры<sup>\*</sup> (см. рис. 2).

6. Из сказанного следует, что в рамках некогерентного приближения и (или) без учета эффекта упругого рассеяния нельзя объяснить экспериментальные данные о полных нейтронных сечениях графита ниже границы Брегга. Вопрос о том, какой вклад в полное сечение дает когерентное неупругое рассеяние, а какой — упругое, в настоящее время, по-видимому, может решить только эксперимент.

Поступила в редакцию  
21 июня 1971 г.

#### Л и т е р а т у р а

1. В. В. Голиков, В. И. Лушиков, Ф. Л. Шапиро. Извлечение ультрахолодных нейтронов из реактора. Доклад на Советании по нейтронной физике (г. Киев, май 1971 г.).
2. D. J. Hughes, R. B. Schwartz. Neutron Cross Sections, BNL-325, New-York (1958).
3. М. В. Казарновский. Neutron Thermalization and Reactor Spectra. Proc. Symp., Ann Arbor, 1967. IAEA, Vienna, 2, 238 (1968).
4. J. Bergsma, C. van Dijk. Preprint RCN-Int-66-103 (1966).

---

\* ) Сечение упругого рассеяния зависит от температуры только через фактор Дебая-Валлера, который при малых энергиях обращается в единицу.

5. A. Ghatak, H. Honeck. Nucl. Sci. Eng., 21, 227 (1965).
6. S. N. Purohit, N. G. Sjöstrand. Pulsed Neutron Research Proc. Symp., Karlsruhe, 1965, IAEA, Vienna, 1, 273 (1965).
7. M. Williams, J. Wood. J. Nucl. Energy, (A/B), 19, 601 (1965).
8. R. Conn. Nucl. Sci. Eng., 40, 17 (1970).
9. А. Ахизер, И. Померанчук. Некоторые вопросы теории ядра. Гостехиздат, 1950 г.
10. И. М. Лифшиц. ЖЭТФ, 26, 551 (1954).
11. E. Katz. J. Chem. Phys., 19, 488 (1951).
12. М. В. Казарновский. ЖЭТФ, 31, 696 (1956).
13. W. De Sorbo, W. W. Tyler. J. Chem. Phys., 21, 1660 (1953).
14. W. De Sorbo, W. W. Tyler. J. Chem. Phys., 26, 244 (1957).
15. P. H. Keesom, N. Pearlman. Phys. Rev., 99, 1119 (1955).
16. W. De Sorbo, W. W. Tyler. General Electric Technical Report RL-1202 (1954).
17. Bergenlid. Phil. Mag., 45, 851 (1954).
18. H. M. Spencer. Ind. Eng. Chemistry., 40, 2153 (1947).
19. A. Magnus. Ann. Physik, 70, 303 (1923).
20. К. Komatsu, Т. Hagamiya. J. Phys. Soc. Japan, 6, 438 (1951).
21. Г. Лейбфрид, В. Людвиг. Теория ангармонических эффектов в кристаллах. ИИЛ, 1963 г.
22. P. Khubchandari, L. Kothari, K. Singwi. Phys. Rev., 110, 70 (1958).