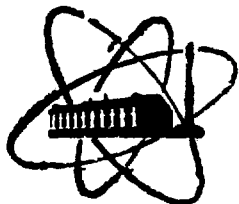


SU8006301



**ФЭИ-965**



**ФИЗИКО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ**

*С. М. ИСКЕНДЕРОВ, А. Г. НОВИКОВ*

**Исследование процесса самодиффузии в воде  
методом квазиупругого рассеяния медленных  
нейтронов**

**ЧАСТЬ 1. Постановка эксперимента и предварительная  
обработка результатов**

**Обнинск — 1979**

С.М.Иванов, А.Г.Новиков

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССА САМОДОВОЗБУЖДЕНИЯ В ВОДЕ  
МЕТОДОМ КВАДРАТУРОГО РАССЕЙЯНИЯ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ

ЧАСТЬ I. Постановка эксперимента и  
предварительная обработка результатов

УДК-539.2

М-17

### А Н Н О Т А Ц И Я

В работе кратко описаны эксперимент и предварительная обработка результатов по исследованию квазиупругого рассеяния медленных нейтронов (начальные энергии 8 мэв и 25 мэв) водой в температурном интервале (300-500)<sup>0</sup>К.

## В В В Д Е Н И Е

1. Главное отличие жидкости от соответствующего твердого тела состоит в том, что при плавлении резко изменяются свойства вещества, связанные с перемещением составляющих его частиц (атомов или молекул), такие как самодиффузия, вязкость, скорость перерождения. Сильное увеличение интенсивности диффузионных движений при плавлении приводит к тому, что в спектре медленных нейтронов, рассеянных жидкостью, появляется составляющая, обусловленная взаимодействием нейтронов с диффузионными степенями свободы и проявляющаяся как упрочнение монокроматической линии нейтронов, первоначально падающей на образец. Эта составляющая спектра рассеяния, получившая название квазупругой, несет в себе информацию о природе диффузионных процессов в жидкости.

2. В рамках формализма пространственно - временных корреляционных функций Ван-Хова, который обычно используется при описании рассеяния медленных нейтронов жидкостями (см. например, [1]), в гауссовом приближении атомная динамика системы описывается полнотью заключенной в кривую функции:

$$\gamma(t) = \frac{1}{3} \int r^2 g_s(\vec{r}, t) d\vec{r} \quad (1)$$

зависящей по физическому смыслу зависящей от времени дисперсной пространственно-временной автокорреляционной функции:

$$g_s(\vec{r}, t) = [\gamma(t)]^{-3/2} \exp\{-r^2/2\gamma(t)\} \quad (2)$$

Кривая функция жидкости  $\gamma_{ж}(t)$  должна учитывать как твердотельную составляющую движения частиц, которая обычно не сильно изменяется при плавлении, так и появившуюся в результате плавления интенсивные диффузионные движения частиц. Поскольку характерные энергии диффузионных движений, как правило, значительно меньше таковых для "твердотельных" степеней свободы, эти два типа движения частицы в определенном приближении можно считать некоординированными и представить  $\gamma_{ж}(t)$  в виде суммы двух членов:

диффузионного и "твердотельного":

$$\chi_{\alpha c}(t) = \chi_{\alpha d}(t) + \chi_{\alpha p}(t) \quad (3)$$

В этом случае закон рассеяния  $S(\alpha, \omega)$  запишется как свертка парциальных законов рассеяния  $S_d(\alpha, \omega)$  и  $S_{cp}(\alpha, \omega)$ :

$$S_s(\alpha, \omega) = \int S_d(\alpha, \omega') S_{cp}(\alpha, \omega - \omega') d\omega' \quad (4)$$

Представив  $S_{cp}(\alpha, \omega)$  в виде суммы упругой и неупругой составляющих, для чего воспользуемся фоновым разложением:

$$S_{cp}(\alpha, \omega) = \exp(-2W) \left\{ \delta(\omega) + \alpha \frac{\gamma}{2\pi} \int [\delta_{\infty} - \gamma(t)] \times \right. \\ \left. \times \exp(-i\omega t) dt + \alpha' [\dots] \right\} \quad (5)$$

получаем: (подробнее см. [2]):

$$S_s(\alpha, \omega) = \exp(-2W) S_d(\alpha, \omega) + F(\alpha, \omega) \quad (6)$$

где  $S_d(\alpha, \omega)$  - часть закона рассеяния, обусловленная взаимодействием нейтронов с диффузионными степенями свободы и получающая название квазупругой;

$F(\alpha, \omega)$  - часть закона рассеяния, связанная со всеми неупругими процессами.

Таким образом, предположение (3) имеет своим следствием выражение (6), согласно которому для <sup>xx)</sup> рассеяния жидкости может быть представлено как сумма двух составляющих: квазупругой и неупругой.

3. По квазупругому рассеянию медленных нейтронов, как средству исследования диффузионных процессов в воде, за последние 10-15 лет выполнено весьма большое число работ. Тем не менее сколько-

ж) Поскольку речь идет о воде, в дальнейшем мы будем иметь в виду только некогерентное сечение рассеяния.

xx) Двойно дифференциальное сечение.

нибудь законченных представлений о характере процесса самодиффузии в воде к настоящему времени все еще не существует. Что касается количественной стороны дела, то здесь следует отметить два обстоятельства. Во-первых, наличие значительные расхождения результатов, полученных различными авторами. Для иллюстрации оказанного на рис. 10 приведена полуширина естественной линии закона квазиупругого рассеяния  $\Delta E$  как функции квадрата передачи импульса  $q^2$ , взятая нами из нескольких работ, выполненных в последние годы (1969-1977 г.г.), а также широко цитированные результаты Ларсона [3]. Во-вторых, основная часть экспериментов по квазиупругому рассеянию выполнена на образцах воды при комнатной температуре. В то же время следует ожидать, что именно в температурной зависимости квазиупругого рассеяния заключена наиболее интересная физическая информация, позволяющая судить предпочтении той или иной модели [4].

Из немногочисленных работ по исследованию температурной зависимости квазиупругого рассеяния [5-7] нам хотелось бы отметить работу Бланкенхагена [6]. По процедуре введения всех поправок и извлечения полуширины квазиупругого пика эта работа представляется нам наиболее последовательной, а результаты, полученные в ней, достоверными. Однако, верхний предел исследованных температур, кстати говоря, максимальный к моменту начала настоящей работы, ограничен  $95^{\circ}\text{C}$ .

4. Целью работы, изложенной в настоящем препринте, было:

а) провести исследования квазиупругого рассеяния медленных нейтронов водой во всем температурном интервале существования ее жидкой фазы;

б) извлечь из этих экспериментов информацию о температурной зависимости процесса самодиффузии в воде;

в) интерпретировать полученную физическую информацию на основе существующих представлений о структурно-динамических особенностях воды.

Работа состоит из двух частей. В первой части кратко описывается эксперимент, методика обработки результатов и извлечение из них безмодельной информации о процессе самодиффузии в воде. Вторая часть посвящена анализу полученных результатов на

основе нескольких моделей самодиффузии и извлечения физических параметров, характеризующих температурную зависимость этого процесса.

Часть материала, изложенного в препринте, и некоторые из предварительных результатов были уже опубликованы ранее [8].

## I. КРАТКОЕ ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Измерение спектров нейтронов, неупругого рассеяния образцами воды, проводилось с помощью двойного импульсного нейтронного спектрометра ДИН-1М [9] при работе реактора ИВР-30 в реакторном режиме ([10], средняя мощность  $W=15$  квт, частота следования импульсов мощности  $\nu \approx 5$  гц). Использовались нейтроны с начальными энергиями  $E_0 = 8$  мэв и 25 мэв. Разрешение прибора по начальной энергии (полуширина пика упругого рассеяния на образце ванадия, см. рис. 5,6) составляла:  $\Delta E_0 = 0,58$  мэв и 2,4 мэв соответственно. Область передач импульса при выбранном нами диапазоне углов рассеяния ( $10^\circ \lesssim \theta \lesssim 40^\circ$ ):

$$0,3A^\circ \lesssim \alpha \lesssim 2,2A^{0-1}$$

Измерения проведены при 6-ти температурах: 300°K, 400°K, 500°K, 548°K, 600°K, 623°K, т.е. охватывается практически весь температурный интервал существования ледяной фазы воды.

Образец представлял собой цилиндр с размерами  $H=160$  мм и  $d=120$  мм, набранный из капилляров, наполненных водой. В температурном интервале (300-500)°K использовались кварцевые капилляры, а при (550-623)°K - стальные капилляры. Капилляры наполнялись таким образом, чтобы при каждой из исследованных нами температур вода находилась в них в состоянии на линии насыщения.

Во время эксперимента образец находился в вакуумированном термостате (рис. I), снабженном системой автоматического поддержания температуры. Неравномерность распределения температуры по образцу не превышала  $\pm 2\%$  от его средней температуры.

Образец содержал  $\sim 6$  г воды, и его пропускание для нейтронов начальной энергии  $E_0 = 8$  мэв составляло  $\sim 85\%$ .

## 2. ОБРАБОТКА РЕЗУЛЬТАТОВ И ПОЛУЧЕНИЕ НЕЗ- МОДЕЛЬНОЙ ИНФОРМАЦИИ О ЗАКОНЕ КВАЗИУП- РУГОГО РАССЕЯНИЯ (ЗКУР).

Обработка экспериментальных данных по квазиупругому рассея-  
нию состоит в получении формы естественной линии ЗКУР и ее полу-  
ширины, как функций угла рассеяния и температуры, несущих в себе  
физическую информацию о процессе самодиффузии в исследуемой жид-  
кости.

### 2.1. ПРЕДВАРИТЕЛЬНАЯ ОБРАБОТКА РЕЗУЛЬТАТОВ

Предварительная обработка результатов включала в себя:

а) поворачивание спектров нейтронов, неупруго рассеянных образ-  
цами воды и являющихся непосредственным результатом измерений, в  
экспериментальные абсолютные дифференциальные сечения рас-  
сеяния. Используемая при этом методика получения абсолютных  
ддс в условиях спектрометра ДИП-1М описана в [11]. В качестве  
примера на рис.2 показаны абсолютные экспериментальные ддс воды  
на угле рассеяния  $\theta = 37^\circ$  и нескольких температурах.

б) введение в полученные ддс поправки на многократное рас-  
сеяния. Поправка рассчитывалась и вводилась на основе специально  
разработанного для этой цели комплекса программ "FISC",  
подробное описание которого можно найти в [12]. В качестве при-  
мера на рис.3 приведены поправочные факторы

$$f = \frac{(\partial \text{дс})_{\text{одн}}}{(\partial \text{дс})_{\text{одн}} + (\partial \text{дс})_{\text{мкр}}} \quad (7)$$

для угла рассеяния  $\theta = 12^\circ$  и двух температур образца:  $300^\circ\text{K}$  и  
 $500^\circ\text{K}$ .

в) вычитание из экспериментального абсолютного ддс, поправ-  
ленного на МКР, неупругой составляющей. Эта составляющая расче-  
тывалась с использованием программы "Prassiv" [13]. В качестве  
модели обобщенного спектра частот воды бралась модель, предложен-  
ная Эванс и др. [14], учитывающая температурную деформацию  
спектра частот воды. Пример полного ддс и его неупругой части



показан на рис. 4 . Если перейти от ддс к закону рассеяния:

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} = \frac{\kappa}{\kappa_0} \mathcal{S}(\alpha, \omega), \quad (8)$$

то неупругая составляющая в области квазиупругого пика оказывается имеющей форму постоянной подюбки , амплитуда которой растет с увеличением угла рассеяния и температуры и в условиях нашего эксперимента не превышает 10% амплитуды квазиупругого пика.

Несколько примеров экспериментального ЗКУР, полученного в результате описанной выше предварительной обработки для двух начальных энергий нейтронов, различных углов рассеяния и температур, показаны на рис. 5, 6.

## 2.2. ПОЛУЧЕНИЕ И АНАЛИЗ ФОРМЫ ЕСТЕСТВЕННОЙ ЛИНИИ ЗКУР

Как отмечалось выше, форма естественной линии ЗКУР несет в себе информацию о характере процесса самодиффузии жидкостей. В связи с этим мы провели восстановление естественной формы квазиупругих пиков из экспериментальных кривых и анализ их формы.

При восстановлении формы естественной линии ЗКУР нами был использован метод решения обратной задачи на основе так называемого байесовского подхода [15, 16] . Отличие этого метода от традиционного метода наименьших квадратов состоит в использовании априорной информации, что приводит к большой устойчивости решения.

С этой целью имеющаяся в нашем распоряжении программа [17] была модернизирована и дополнена рядом блоков, позволяющих учесть специфику нашей экспериментальной информации [18] .

Примеры восстановленных таким образом естественных кривых ЗКУР для нескольких углов и температур показаны на рис. 7-9. Специально проведенные расчеты показали хорошую устойчивость решения к вариациям априорной информации. Поэтому во всех случаях решения обратной задачи в качестве априорных кривых использовались экспериментальные спектры квазиупругого рассеяния с их статистическими ошибками.

Анализ естественных кривых по форме показал, что они весьма близки к лоренциану. Это обстоятельство позволило подойти к нахождению естественной линии ЗКУР другим путем. Если исходить из предположения, что аналитический вид естественной линии нам известен и может быть задан параметрически, то, взяв в качестве априорной информации предполагаемые параметры решения и сверачивая априорную кривую с функцией разрешения прибора, окончательные параметры решения можно найти путем оптимальной подгонки расчетно-экспериментальной и истинно экспериментальной кривых. Для того, чтобы реализовать этот путь, программа [17] была дополнена блоками свертки функции разрешения прибора с априорной кривой, численного нахождения параметрических производных, а также блоком, осуществляющим итерационный процесс (подробнее см. [18]).

Оба метода нахождения естественной линии ЗКУР дали совпадающие результаты (см. рис. 7).

### 2.3. ПОЛУЧЕНИЕ ПОЛУШИРИНЫ ЕСТЕСТВЕННОЙ ЛИНИИ ЗКУР И ЕЕ ОШИБКИ

Сравнение экспериментальных данных по квазиуругому рассеянию с модельными расчетами проводится, как правило, на уровне полуширины естественной линии ЗКУР. Поэтому ее извлечение из экспериментальных данных является одной из важнейших операций обработки. В нашем случае полуширины естественной линии ЗКУР были получены в процессе описанного выше анализа формы экспериментальных кривых.

Полный набор полученных нами естественных полуширин, как функции  $\alpha^2$  и температуры, показан на рис. 10, 11. Отдельно на рис. 10 представлены данные для 300 °К. Ввиду особой важности этой температуры мы приводим для нее не только свои данные, но и результаты других авторов, которые, как упоминалось во введении, в значительной степени противоречивы. Наиболее надежными нам представляются полученные сравнительно недавно результаты Бланкенхагена [6] и Уайта [19]. Полуширины из работ [3, 5, 20] оказываются лежащими значительно ниже соответствующих результатов Бланкенхагена, Уайта и настоящей работы. Одна из возможных при-

чин этого может состоять в неверном вычитании неупругой составляющей (простой экстреполяцией под квазиупругим пиком), причем ошибка, которая при этом делается, должна возрастать с углом, что и наблюдается на самом деле.

Остановимся на методе, которым были получены ошибки  $\Delta E_{\text{ест}}$ , нанесенные на рис. I0, II. Алгоритмы решения задач восстановления естественной формы экспериментальных спектров, реализованные в соответствующих программах обработки [17, 18], предполагают, что функция разрешения прибора известна точно. Учет ошибки функции разрешения в подобного рода расчетах представляет собой весьма сложную математическую задачу [16, 17]. В наших условиях пренебрегать ошибкой функции разрешения было нельзя, т.к. кривая эта получившаяся экспериментально (статистическая ошибка в максимуме составляет  $\sim 2\%$ , на крыльях составляет  $\sim 30\%$ ), ее ошибки особенно в случае "плохого разрешения" ( $\Delta E_{\text{ест}} < \Delta E_{\text{раз}}$ ) могли давать основной вклад в неопределенность  $\Delta E_{\text{ест}}$ .

Для получения ошибки  $\Delta E_{\text{ест}}$  с учетом неточностей экспериментальных кривых как ЗКУР, так и функций разрешения, мы воспользовались обходным путем. Лоренцианы различной полуширины сварачивались с функцией разрешения, и численным методом была получена кривая

$$\frac{\Delta E_{\text{ест}}}{\Delta E_{\text{раз}}} = f\left(\frac{\Delta E_{\text{экс}}}{\Delta E_{\text{раз}}}\right) \quad (9)$$

(см. рис. I2, для простоты будем дальше обозначать  $\Delta E_{\text{ест}}$ ,  $\Delta E_{\text{экс}}$  и  $\Delta E_{\text{раз}}$  раз через  $\Delta_1$ ,  $\Delta_2$  и  $\Delta_3$  соответственно).

Эта кривая после того, как она была приближенно описана аналитической функцией, использовалась для получения дисперсии полуширины  $\Delta_1$ , по соотношению:

$$D(\Delta_1) = f^2 D(\Delta_3) + (\Delta_3)^2 D(f) \quad (10)$$

В свою очередь:

$$D(f) = \left[\frac{\partial f}{\partial(\Delta_2)}\right]^2 D(\Delta_2) + \left[\frac{\partial f}{\partial(\Delta_3)}\right]^2 D(\Delta_3) \quad (11)$$

Нанесенная на рис. I0, II ошибка естественной полуширины представляет собой среднеквадратичную ошибку  $\sqrt{D(\Delta_1)}$ , полученную по

соотношениям (10) и (11). Ее относительное возрастание при малых  $\Delta E$  есть вызвано увеличением в этой области вклада второго слагаемого в (11), связанного с функцией разрешения.

#### 2.4. ПОЛУЧЕНИЕ УГЛОВОЙ ЗАВИСИМОСТИ ИНТЕГРАЛЬНОЙ ИНТЕНСИВНОСТИ ЗКУР

При анализе экспериментальных данных по квазиупругому рассеянию медленных нейтронов водой было установлено, что интегральная интенсивность квазиупругого рассеяния в области температур  $t < 100^\circ\text{C}$  может быть описана выражением типа:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{кв.уп.}} \sim \exp(-2W) \quad (12)$$

т.е. определяется фактором Дебая-Уоллера, который, будучи записан в виде

$$2W = \alpha^2 \bar{U}^2 \quad (13)$$

позволяет оценить средний квадрат амплитуды колебаний молекулы

$$\bar{U}^2 = \int \frac{\hbar}{M\omega} \frac{\text{ctg} \frac{\hbar\omega}{2kT}}{2kT} g(\omega) d\omega \quad (14)$$

В нашем случае представляло большой интерес убедиться в том, справедлив ли такой подход в более широком температурном интервале, и если справедлив, то какова температурная зависимость величины  $\bar{U}^2$ .

Для нахождения интегральной интенсивности ЗКУР площадь под его кривой разбивалась на два слагаемых. Первое слагаемое - площадь под экспериментальной кривой, находилась суммированием экспериментальных интенсивностей, полученных в соответствующих каналах. Часть ЗКУР, не охваченная экспериментом, находилась продолжением "экспериментальной" кривой, полученной свертыванием естественной линии с реальной функцией разрешения. На малых углах и низких температурах площадь, заключенная под крыльями, находилась численным интегрированием "экспериментальной" кривой.

Пределы интегрирования выбирались таким образом, чтобы отброшенная площадь не превышала (1-2)% общей площади под кривой ЗКУР. Вклад крыльев составляет в этих случаях 10%.

На больших углах и высоких температурах, где экспериментальная кривая близка к лоренциану, площадь под крыльями находилась путем аналитического интегрирования этой кривой. Вклад крыльев в общую площадь составил в этих случаях (30-50)%. Интегральная интенсивность ЗКУР как функция  $\alpha^2$  в полулогарифмическом масштабе представлена на рис. 13. Через экспериментальные точки методом наименьших квадратов проведены прямые, наклон которых позволяет найти средний квадрат амплитуды колебаний молекул ( $\overline{u^2}$ ). Среднеквадратичная амплитуда колебаний молекул  $\sqrt{\overline{u^2}}$  как функция температуры приведена на рис. 14.

### 3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

3.1. Проведенный нами анализ формы естественной линии ЗКУР позволяет сделать заключение, что в области температур (300-600)<sup>o</sup>К эта линия имеет простую форму, близкую к лоренциану. Попытка описать ее другой кривой, например, гауссианом, приводит к существенно худшему согласию с экспериментом (см. рис. 15).

Для ряда углов и температур мы пытались представить естественную линию ЗКУР в виде суперпозиции двух лоренцианов.

Результаты проведенных расчетов показаны в таблице I, где  $\Delta E_1$ ,  $H_1$  - полуширина и амплитуда первого лоренциана,  $\Delta E_2$ ,  $H_2$  - полуширина и амплитуда второго лоренциана соответственно. Оказалось, что второй лоренциан с разумными параметрами можно обнаружить у кривых, полученных для комнатной температуры при условии, что в них не введена поправка на МКР. После введения этой поправки (а она максимальна именно для комнатной температуры, см. рис. 3) второй лоренциан практически исчезает (см. рис. 16).

При температурах, приближающихся к критической (350<sup>o</sup>С), ЗКУР также может быть описан лоренцианом, но его максимум оказывается сдвинутым относительно начальной энергии нейтронов  $E_0$ , причем сдвиг этот растет с увеличением угла рассеяния (см. рис. 15). Возможная причина такого явления может состоять в том, что в области критического состояния в воде появляются рассеивающие объекты, ведущие себя газоподобным образом.

Возможность описания естественной линии ЗКУР с помощью одной лоренцевской кривой говорит о том, что во всей области температур, охваченной в нашем эксперименте, влияние вращательной составляющей самодиффузии несущественно.

3.2. В пользу такого вывода свидетельствует и еще одно обстоятельство. Как известно, наклон кривой  $\Delta E = f(\alpha^2)$  при  $\alpha \rightarrow 0$  определяется величиной коэффициента самодиффузии. Минимальное значение  $\alpha$ , реализованное в нашем эксперименте:

$$\alpha_{\min} = 0,35 \text{ \AA}^{-1} \quad (15)$$

Это означает, что пространственная область, которую нейтрон "видит" в процессе взаимодействия, составляет:

$$\Delta r \approx \frac{1}{\alpha_{\min}} = 3 \text{ \AA} \quad (16)$$

что примерно соответствует длине диффузионного скачка в воде (межмолекулярное расстояние  $d \approx 2,8 \text{ \AA}$ ). В этих условиях, хотя и с трудом, можно ожидать, что детали отдельного диффузионного акта окажутся несущественными, и диффузия будет восприниматься как непрерывная.

Исходя из этих соображений, мы воспользовались значениями  $\Delta E(\alpha_{\min})$ , чтобы определить температурную зависимость коэффициента самодиффузии (см. рис. I7).

В области низких температур наши результаты также, как и нейтронные результаты других авторов (см. например, [19]), совпадают со значениями коэффициента самодиффузии, полученными методом спин-эха и методом меченых атомов, которые, как известно, не чувствительны к вращательному движению частицы. Это обстоятельство подтверждает сделанный нами ранее вывод о незначительном вкладе вращательной составляющей в диффузионные движения молекул воды.

Расхождение полученного нами  $D(T)$  и кривой рис. I7 в области больших температур связано, по видимому, с возрастанием длины диффузионного скачка.

3.3. Наличие угловой зависимости интегральной интенсивности ЗКУР и возможность извлечь из нее эффективный коэффициент Дебая-

Уоллера свидетельствует об элементах квазикристалличности в микродинамическом поведении воды. Полученная нами слабая температурная зависимость среднеквадратичной амплитуды  $\sqrt{u^2}$  колебаний молекул в поле своих соседей позволяет сделать вывод о том, что силы межмолекулярного взаимодействия в температурном интервале (300-600)°K меняются незначительно.

На рис. 14 экспериментальная зависимость  $\sqrt{u^2} = f(T)$  сравнивается также с расчетом, выполненным по программе "Просонв" с использованием двух динамических моделей воды, учитывающих температурную деформацию ее обобщенного частотного спектра [14, 24]. Из сравнения видно, что значительно ближе к эксперименту оказывается модель Хейлуда [24].

Амплитуда колебаний молекул составляет 20% межмолекулярного рассеяния в воде. Вклад вибрационной составляющей  $D_{vib} = \frac{34}{6}\%$  в общий коэффициент самодиффузии  $D(T)$ , а в наших условиях он максимален при низких температурах, не превышает (5-7)%.

Литература

1. Гуревич И.И., Тарасов Л.В. Физика нейтронов низких энергий, М., "Наука", 1965.
2. Springer T. "Quasielastic Neutron Scatt. for the Invest. of Diffusion Mot. in Solids and Liquids", Springer Verlag, Berlin, 1972.
3. Larsson K-E., Dahlborg U. Physica, 30, 1561 (1964).
4. Egelstaff P. Adv. in Phys., 11, 203 (1962).
5. Safford G. et al. J. Chem. Phys., 50, 4444 (1969).
6. Blankenhagen P. Ber. Bunsenges Phys. Chem., 76, 891 (1972).
7. Голиков В.В. и др. Inel. Neutron Scatt. Proc. of Symp., IAEA, Vienna, 1965, v.2, p 201.
8. Новиков А.Г., Искендеров С.М. "Атомная энергия". 42, 498, 1977.
9. Лифоров В.Г. и др. Препринт ФЭИ-129, Обнинск, 1968.
10. Голиков В.В. и др. Препринт ОИЯИ, 3-5736, 1971.
11. Лисичкин Ю.В., Новиков А.Г., Парфёнов В.А. Материалы III Всесоюзной конференции по нейтронной физике, М, 1976, ч.2, стр. 271.
12. Лисичкин Ю.В. и др. "Ядерные константы", вып. 33, стр. 12, 1979.
13. Майоров Л.В. и др. Proc. of 3-rd UN. Int. Conf RUAV., Vienna, 1965, v.2, p 379.
14. Nach K. et al. Nucl. Sci. and Eng., 46, 223 (1971).
15. Ваньков А.А. "Ядерные константы", вып. 16, стр. II, (1974).
16. Ваньков А.А. Препринт ФЭИ-425, 426, 1974.
17. Ваньков А.А. и др. "Ядерные константы", вып. 21, стр. 32 (1976).



18. Искендеров С.М. и др. "Ядерные константы", вып.34, стр. 44 (1979).
19. White J. Incl. Neutron Scatt., Proc. of Symp.,  
IAEA, Vienna, 1972, p. 315.
20. Franks F. et al. Proc. Roy. Soc. A319, 189 (1970).
21. Иванов Г.К. ЛЭТО, 51, 1120 (1966).
22. Simpson J. Carr H. Phys. Rev., 111, 1201 (1958).
23. Hausser R et al. Z.f. Naturf. 21a, 1410 (1966).
24. Page D, Haywood B. AERE R5778 (1968).
25. Harling O. Incl. Neutron Scatt. Proc. of Symp.,  
IAEA, Vienna, 1968, V.1, p 507.

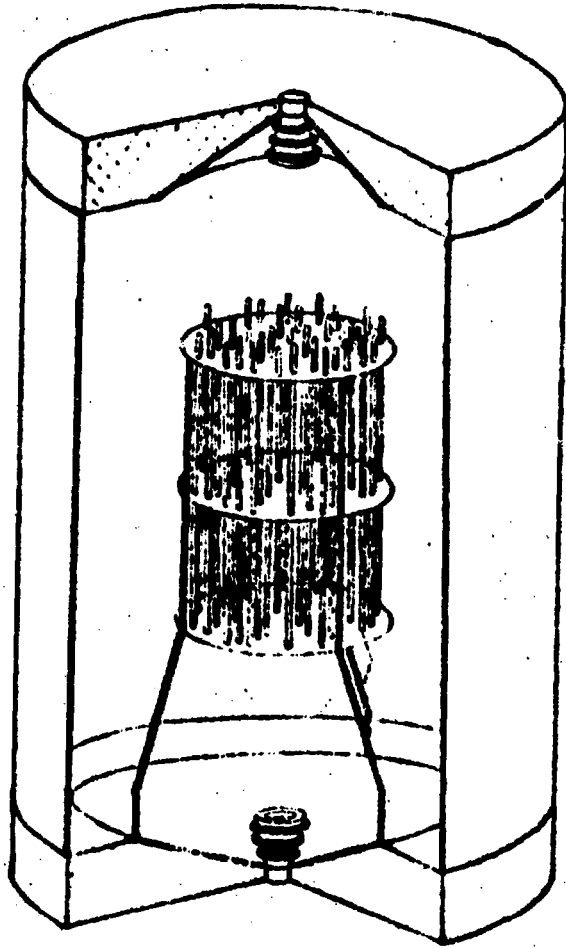


Рис. I. Образец с термостатом.

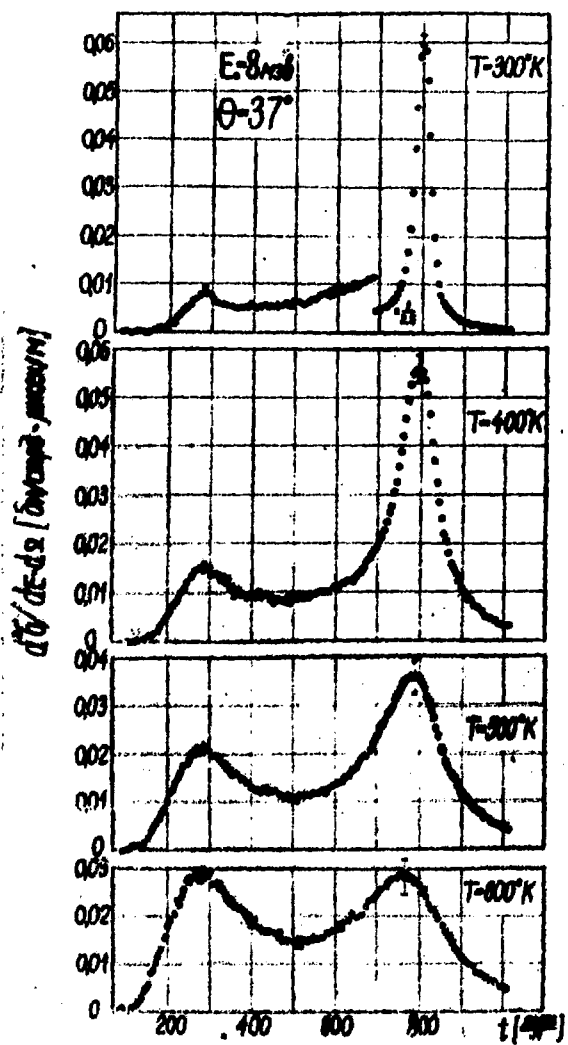


Рис. 2. Экспериментальные абсолютные двойные дифференциальные сечения воды при различных температурах для  $E_0 = 8$  мэв,  $\theta = 37^\circ$ .

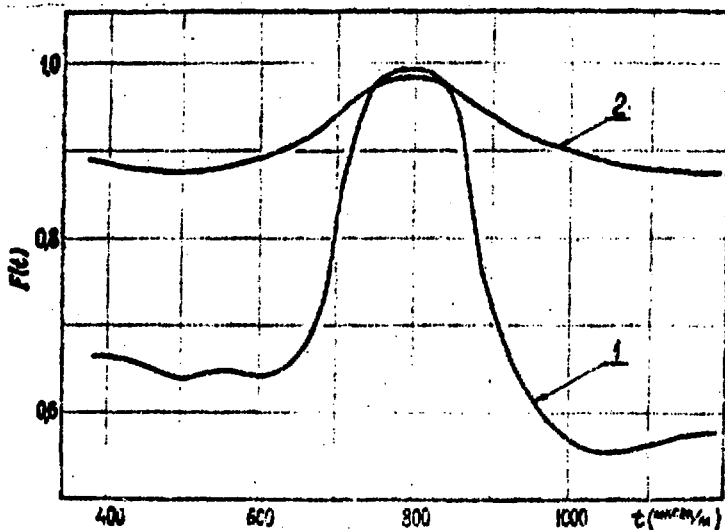


Рис. 3. Поправочный фактор многократного рассеяния для угла рассеяния  $\theta = 12^\circ$  и при  $E_0 = 8$  мэВ  
1 -  $T = 300^\circ\text{K}$ , 2 -  $T = 500^\circ\text{K}$ .

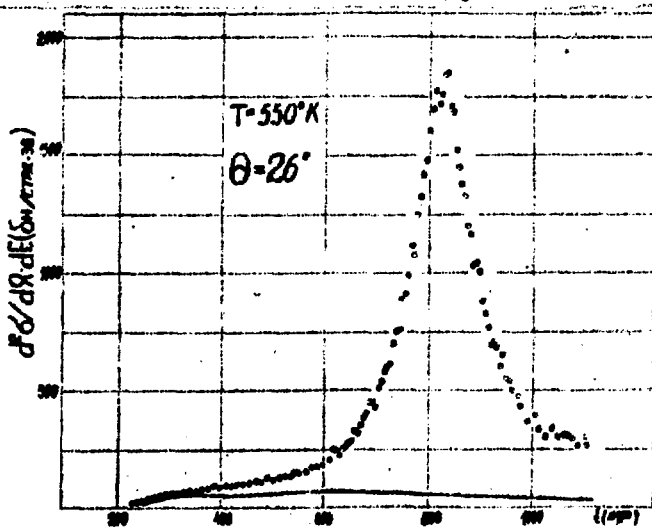


Рис. 4. К учету эффекта неупругого рассеяния  
••••• - экспериментальные дан.;  
— - расчет сечения неупругого рассеяния по модели [14].

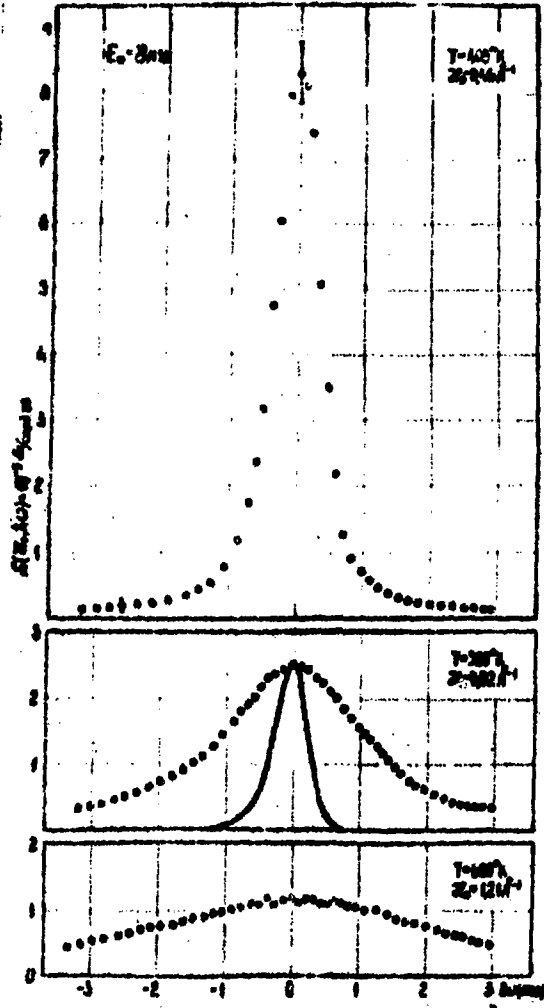


Рис. 5. Примеры экспериментальных законов квазиупругого рассеяния при  $E_0 = 8$  мэв для разных углов рассеяния и температур.

— — функция разрешения.

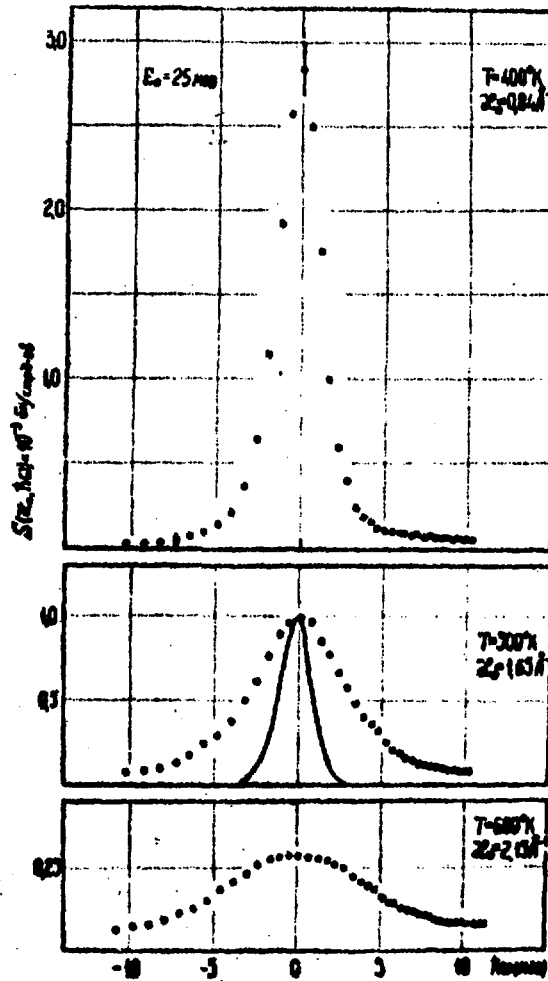


Рис. 6. Примеры экспериментальных законов квазиупругого рассеяния при  $E_0 = 25$  мэВ для разных углов рассеяния и температур.

— — функция разрешения.

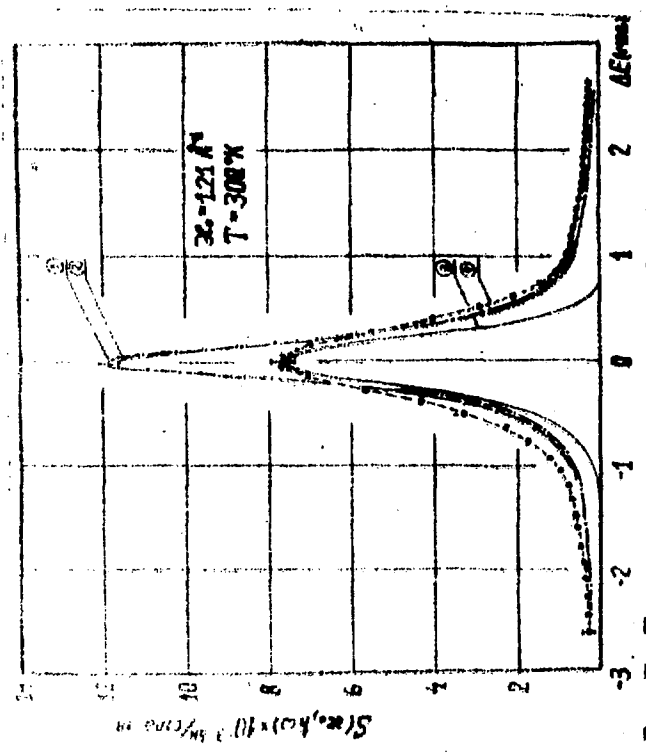


Рис. 7. Получение формы естественной линии поглощения на квазиобратного рассеяния (случай сильного влияния функции разрезания:  $\Delta E_{рас}/\Delta E_{ис} = 0,67$ )

- 1 - кривая, полученная при разрезании обратной задачи;
- 2 - лоренцiana, полученный при разрезании прямой задачи ( $\Delta E = 0,508 \text{ мэВ}$ ;  $\hbar = 1,66 \cdot 10^{-34} \text{ Дж} \cdot \text{с}$ );
- 3 - функция разрезания;
- 4 - "экспериментальная" кривая, полученная путем сверстки функции разрезания с лоренцианом 2.

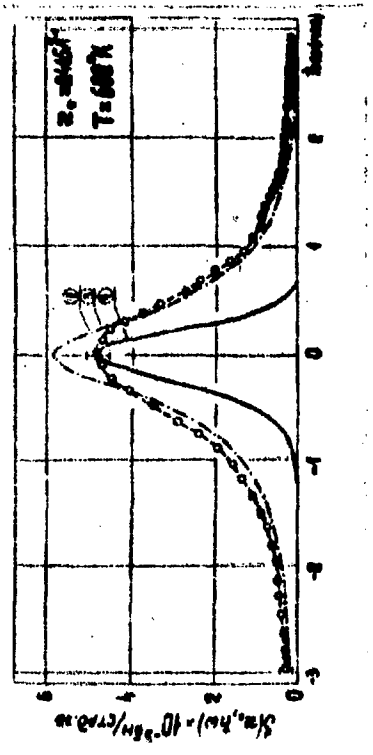


Рис. 8. Получение формы естественной линии поглощения на квазиобратного рассеяния при разрезании обратной задачи (случай умеренного влияния функции разрезания:  $\Delta E_{рас}/\Delta E_{ис} = 0,41$ )

- 1 - функция разрезания прибора;
- 2 - кривая, полученная при разрезании обратной задачи;
- 3 - "экспериментальная" кривая, полученная путем сверстки функции разрезания с кривой 2.

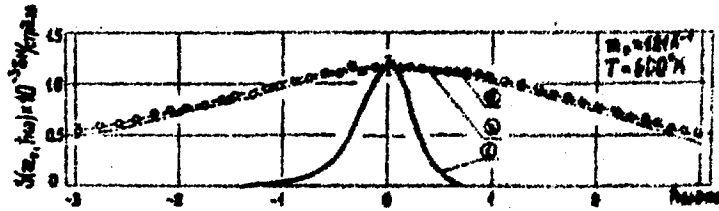


Рис. 9. Получение формы естественной линии закона квазиупругого рассеяния при решении обратной задачи (случай слабого влияния функции разрешения:  $\Delta E_{раз}/\Delta E_{эксп} = 0,11$ )  
 1 - функция разрешения;  
 2 - кривая, полученная при решении обратной задачи;  
 3 - "экспериментальная" кривая, полученная путем свертки функции разрешения с кривой 2.

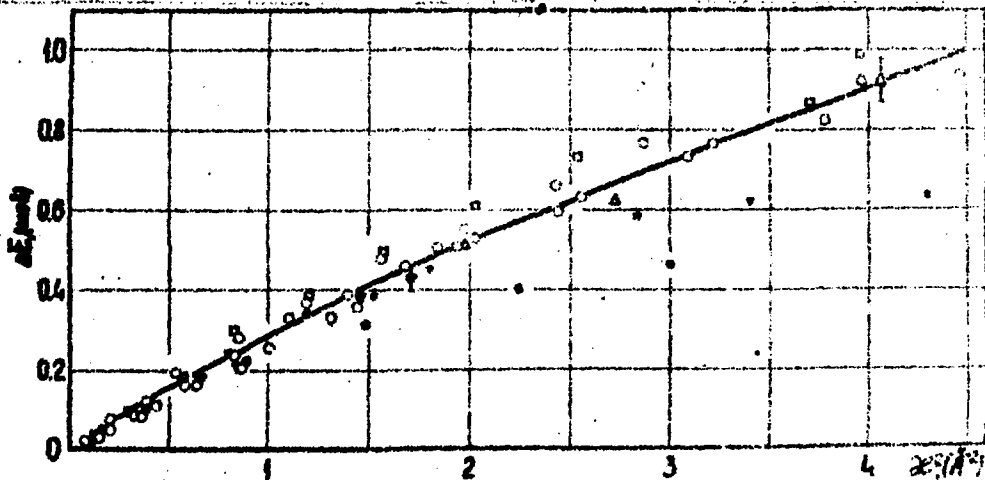


Рис. 10. Полуширина закона квазиупругого рассеяния для воды как функция квадрата передачи импульса при комнатной температуре:  
 ○ - результаты Уайта [19] ;  
 ● - результаты Франка [20] ;  
 □ - результаты Бланкенхагена [6] ;  
 ■ - результаты Саффорда [5] ;  
 ▼ - результаты Ларсона [3] ;  
 ▽ - результаты настоящей работы при  $E_0 = 8$  мэв;  
 ▲ - результаты настоящей работы при  $E_0 = 14,5$  мэв;  
 — - Описание экспериментального набора точек с помощью модели Сокотского (см. часть 2)



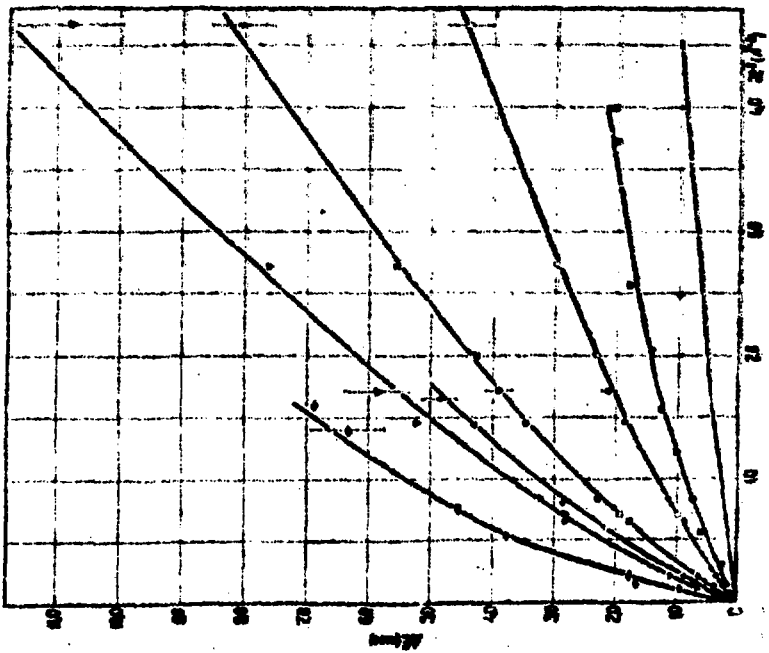


Рис. 11. Подштрена закона квазиупругого рас-  
 селения для воды как функции квадратата  
 перепада температуры в температурном диа-  
 пазоне (400-623) К.  
 T=350 К. □ - E, - 25мвз; T=400 К. ○ -  
 E, - 8мвз. ○ - E, - 25мвз; T=450 К. △ -  
 E, - 8мвз. □ - E, - 25мвз; T=500 К. ▲ -  
 E, - 8мвз. ▽ - E, - 8мвз, ▽ -  
 E, - 25мвз; T=550 К. ◇ - E, - 8мвз.  
 T=600 К. ○ - E, - 8мвз.

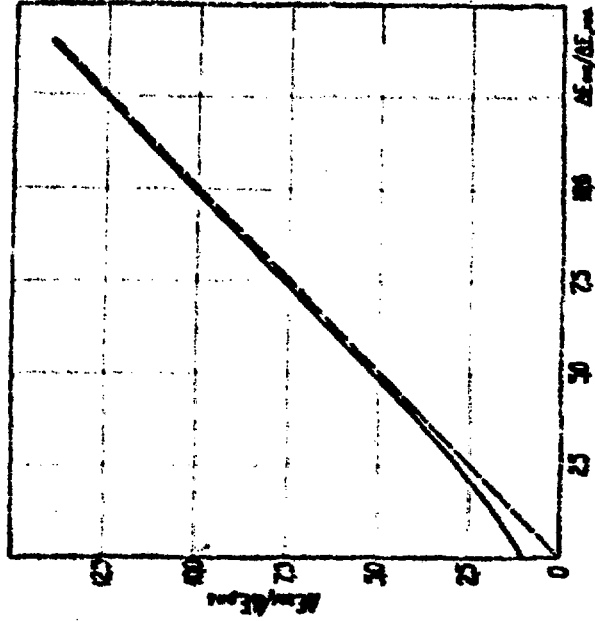


Рис. 12. Связь между коэффициентом экспонен-  
 циального закона квазиупругого  
 рассеяния и естественной длиной за-  
 кона квазиупругого рассеяния при  
 заданной функции распределения.

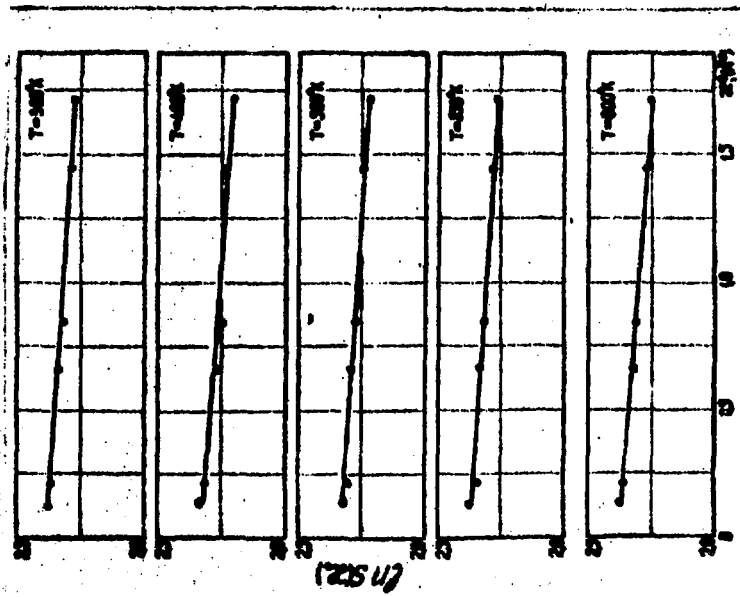


Рис. 13. Угловая зависимость интегральной интенсивности квазиупругого рассеяния от квадрата передаточной функции при различных температурах ( $\epsilon_p = 8.2 \times 10^{-3}$ )

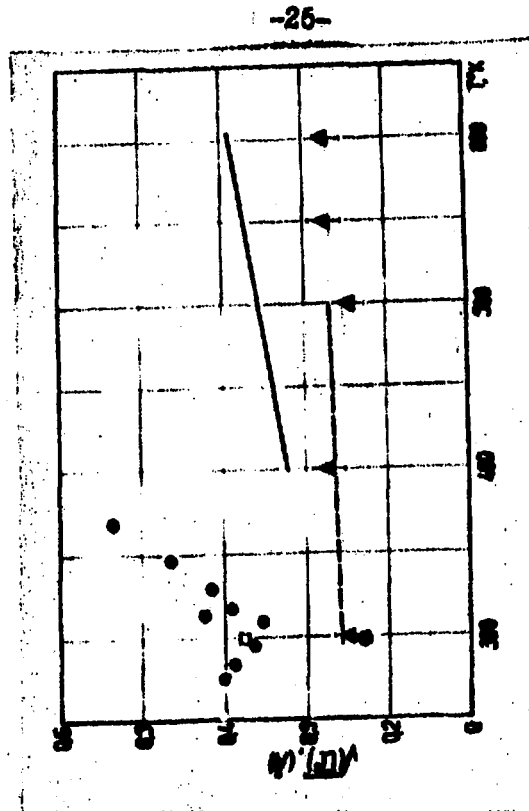


Рис. 14. Среднеквадратичная амплитуда тепловых колебаний молекул

- - результаты Ларсона [3];
- - результаты Харинга [25];
- - результаты Бьякенбергера [6];
- △ - результаты Ланной работы;
- — расчет по модели [24];
- — расчет по модели [14].

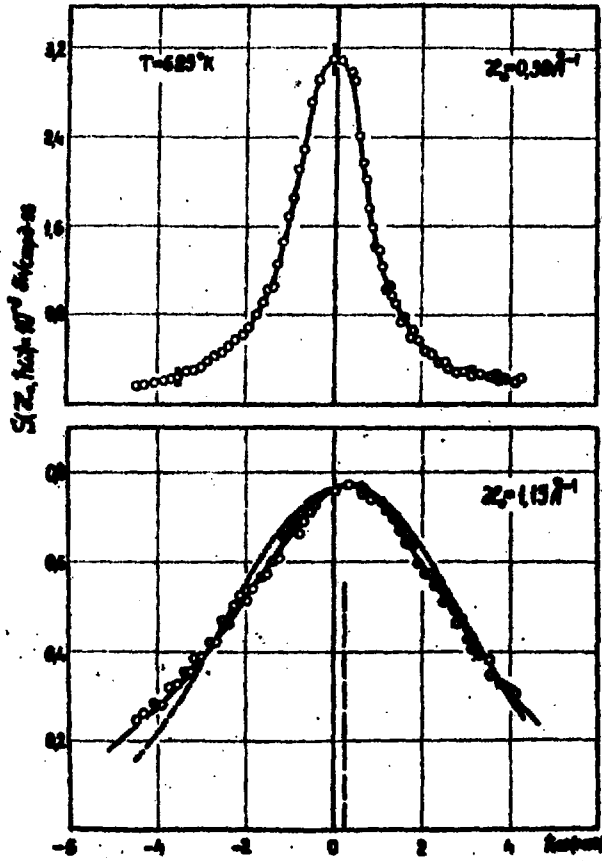


Рис. 15. Примеры экспериментальных законов квазиупругого рассеяния при  $E_0 = 8 \text{ мэВ}$ ,  $T = 623^\circ \text{К}$  для двух углов рассеяния:

- — — "экспериментальная" кривая, получаемая путем свертки функции разрешения с лоренцианом;
- - - "экспериментальная" кривая, получаемая путем свертки функции разрешения с гауссианом, полуширина и амплитуда которого совпадают с соответствующими величинами для лоренциана.

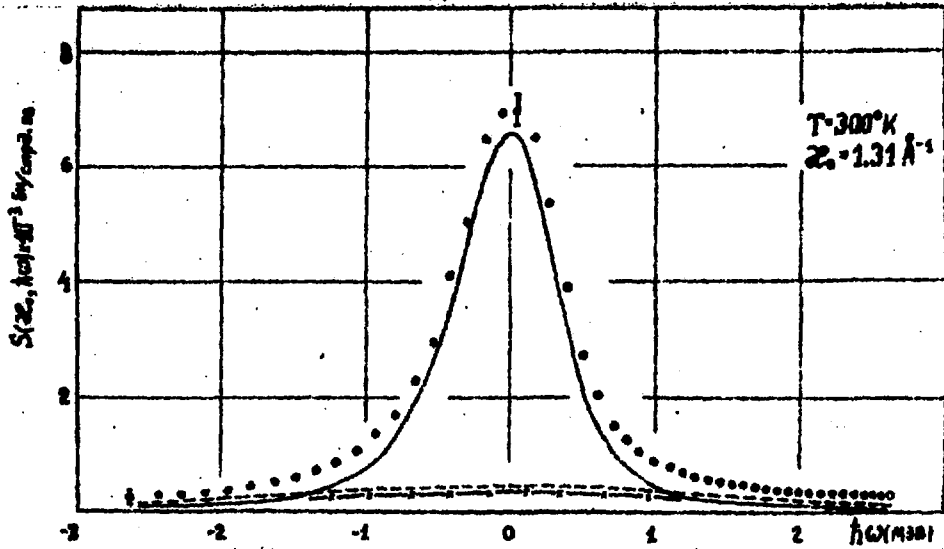


Рис. 16. Разложение естественной линии квазиупругого рассеяния на два лоренциана:

- — первая составляющая "экспериментальной" кривой, полученная путем свертки функции разрешения с первым лоренцианом;
- - - вторая составляющая "экспериментальной" кривой, полученная путем свертки функции разрешения со вторым лоренцианом;
- x— — вклад многократного рассеяния.

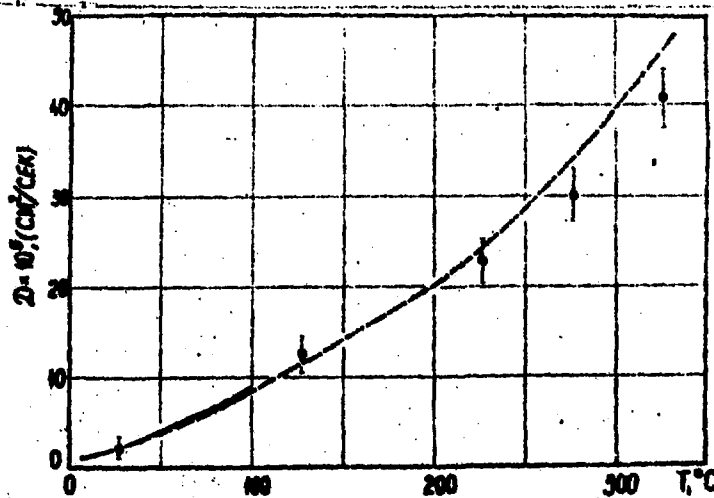


Рис. 17. Температурная зависимость коэффициента полной самодиффузии воды.

- — результаты работы [22];
- - - результаты работы [23];
- — результаты данной работы.

ТАБЕЛИЦА I

Т°К	$\alpha, \text{Å}^{-1}$	$\Delta E_1$ (мэВ)	$H_1$	$\Delta E_2$ (мэВ)	$H_2$	до 100% от МКР		После выпр. от МКР
						$H_2/H_1$	$\Delta E_2/\Delta E_1$	
300	0.46	0.073	61.7	4.67	0.33	0.005	64.0	0.001
300	0.82	0.14	34.4	3.63	0.45	0.013	25.9	0.003
300	1.31	0.37	12.2	3.21	0.54	0.043	8.70	0.012
400	0.82	0.79	6.60	100.0	0.17	0.025	126.6	0.010
500	0.92	2.43	2.67	100.0	-0.08	-0.03	44.2	—

$\mu(H) = 10^3 \text{ см}^2/\text{срэд. см}$

Подписано в печать 23/УМ-1979 г. Т-14464 Формат 60x90 I/16  
 Офсетная печать Усл.п.л. 1,8 Уч.-изд.л. 1,2 Тираж 91 экз.  
 Заказ № 1020 Цена 12 коп. Видеок 3624 ФЭМ-965

Отпечатано на ротанриите ФЭМ, декабрь 1979 г.



**12 коп.**

**Индекс 3624**