

Нейтронография жидкого галлия

Н.М. Благовещенский, А.Г. Новиков,
А.В. Пучков, В.В. Савостин

ГНЦ РФ - Физико-энергетический институт
им. А.И. Лейпунского, г. Обнинск

Основные характеристики

Галлий / Gallium (Ga), 31

Атомная масса 69.7 а.е.м.

Плотность 5.91 г/см³

Температура плавления 29.8 °C (302.8 K)

Температура кипения 2230 °C (2503 K)

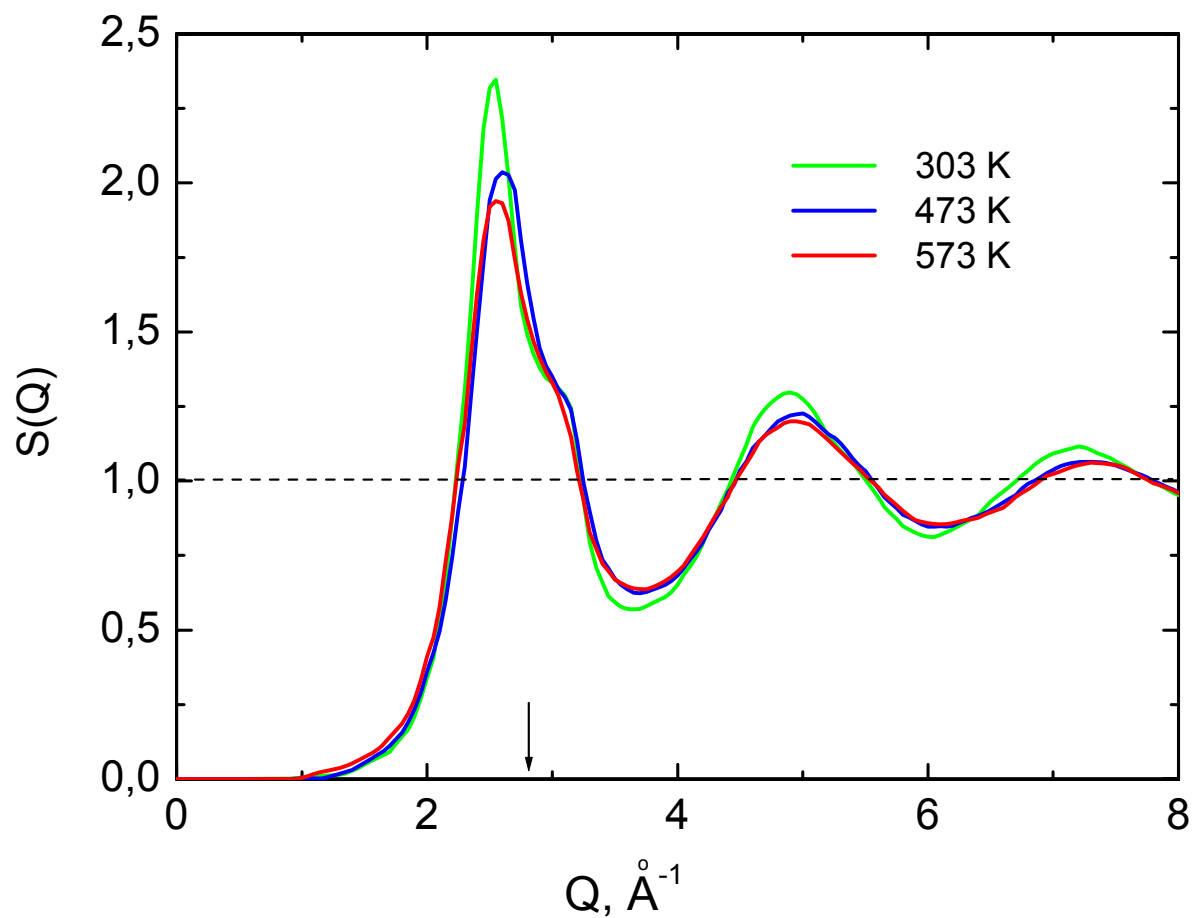
Структура решетки орторомбическая

Параметры решетки
 $a = 4.52 \text{ \AA}$ $b = 7.66 \text{ \AA}$
 $c = 4.53 \text{ \AA}$

Жидкий галлий

- Жидкий галлий – вещество, обладающее рядом необычных свойств. Обширный температурный диапазон существования жидкой фазы (303 – 2503 K) и низкое давление насыщенных паров при $T < 1400$ K делает галлий **перспективным** теплоносителем с выдающимися термогидравлическими свойствами. Недавно, например, галлий предложено использовать в качестве рабочего вещества самоохлаждающейся мишени фотон-нейтронного конвертора на пучке электронного ускорителя в проекте компактного экологически чистого источника для нейтрон-захватной терапии.
- Кроме практического применения галлия существует и научный интерес исследовать это уникальное вещество. Структурный фактор $S(Q)$ жидкого Ga обладает асимметричной формой главного пика, а дисперсионная кривая Ga, $\varepsilon(Q)$, по всей видимости, двухкомпонентна. Обе эти особенности позволяют рассматривать жидкий галлий как вещество, имеющее две существенно различные плотности, вероятно связанные с массами M и $2M$. Действительно, было показано наличие в галлии димеров при температуре порядка 1000 K. Изучение самодиффузии в Ga может оказаться очень информативным с этой точки зрения.

Структурный фактор жидкого галлия

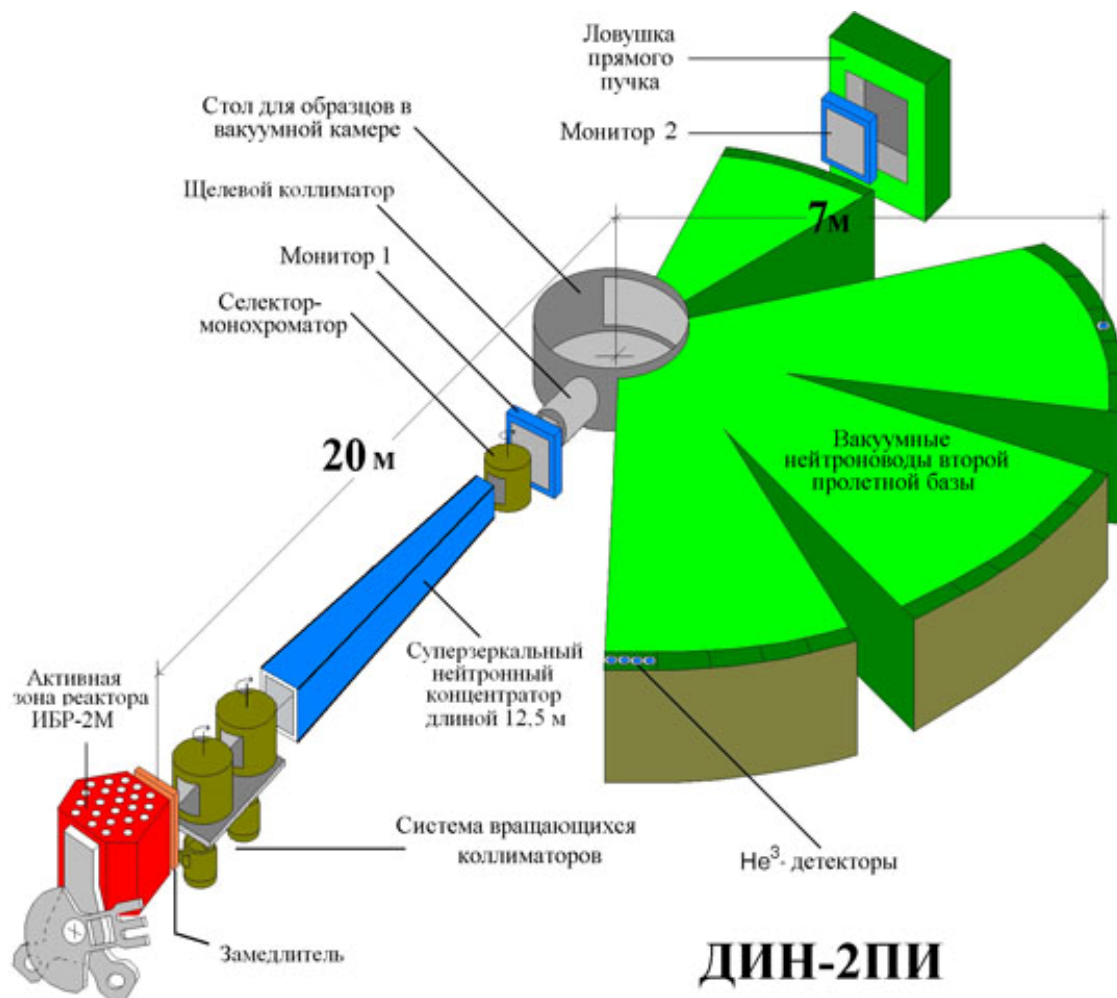


$$Q = 4\pi/\lambda \sin\theta/2$$

λ - длина волны нейтрона;

θ - угол рассеяния.

Нейтронный спектрометр ДИН-2ПИ

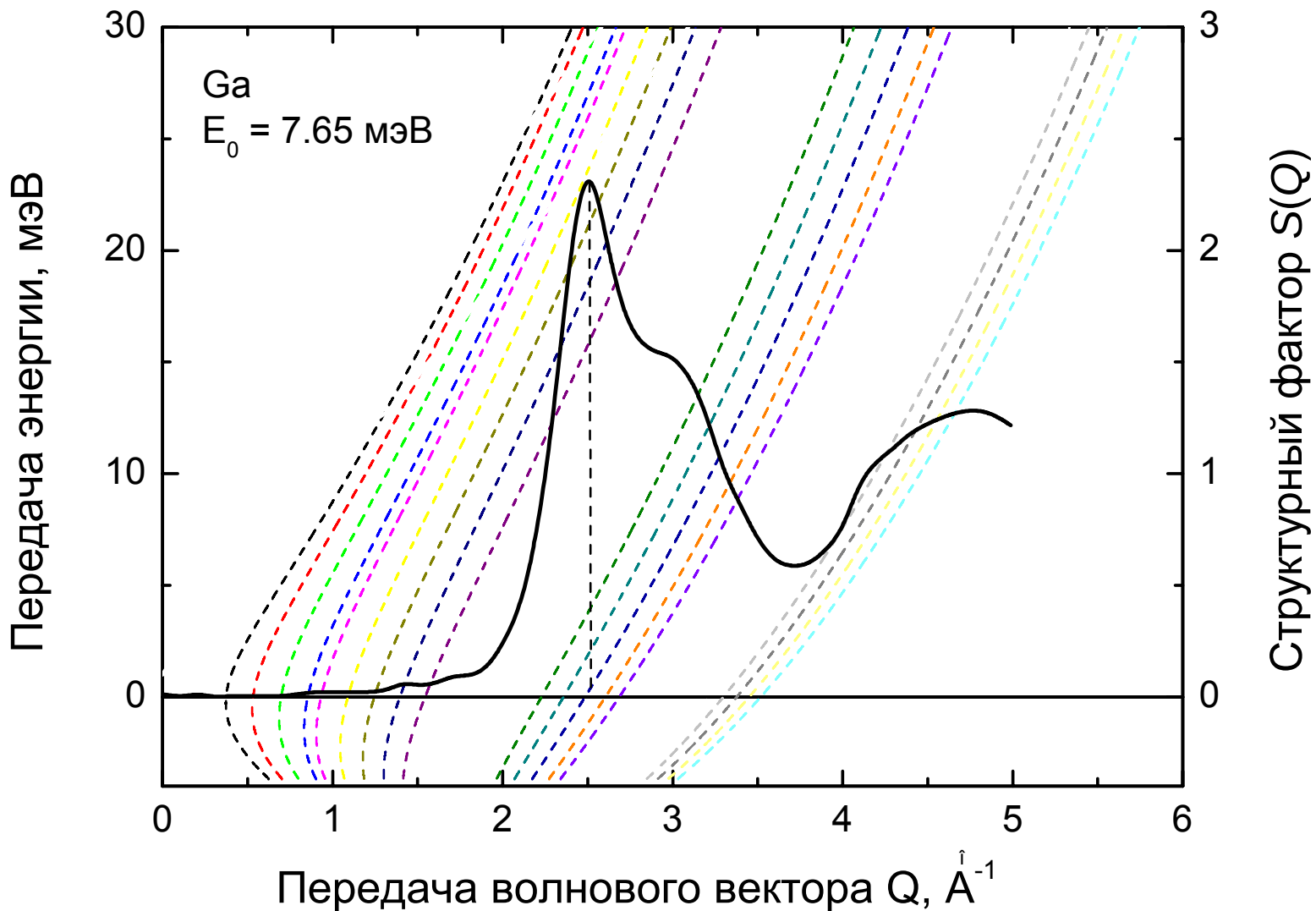


Эксперимент по квазиупругому рассеянию медленных нейтронов на жидком галлии

Условия эксперимента

- Сечения рассеяния нейтронов для Ga
 $\sigma_{\text{нк}} = 0.16$ барн, $\sigma_{\text{к}} = 6.68$ барн, $\sigma_{\text{а}} = 5.0$ барн,
- Температуры образца Ga:
313, 433, 553, 673, 793 K
- Начальная энергия нейтронов:
 $E_0 = 7.65$ мэВ, $\Delta E_0/E_0 = 6.5 \%$ (0.5 мэВ)
- Вес образца Ga: 326 г. Контейнер: 20 Nb трубок диаметром 5 мм

Кинематические соотношения для рассеянных в Ga нейтронов

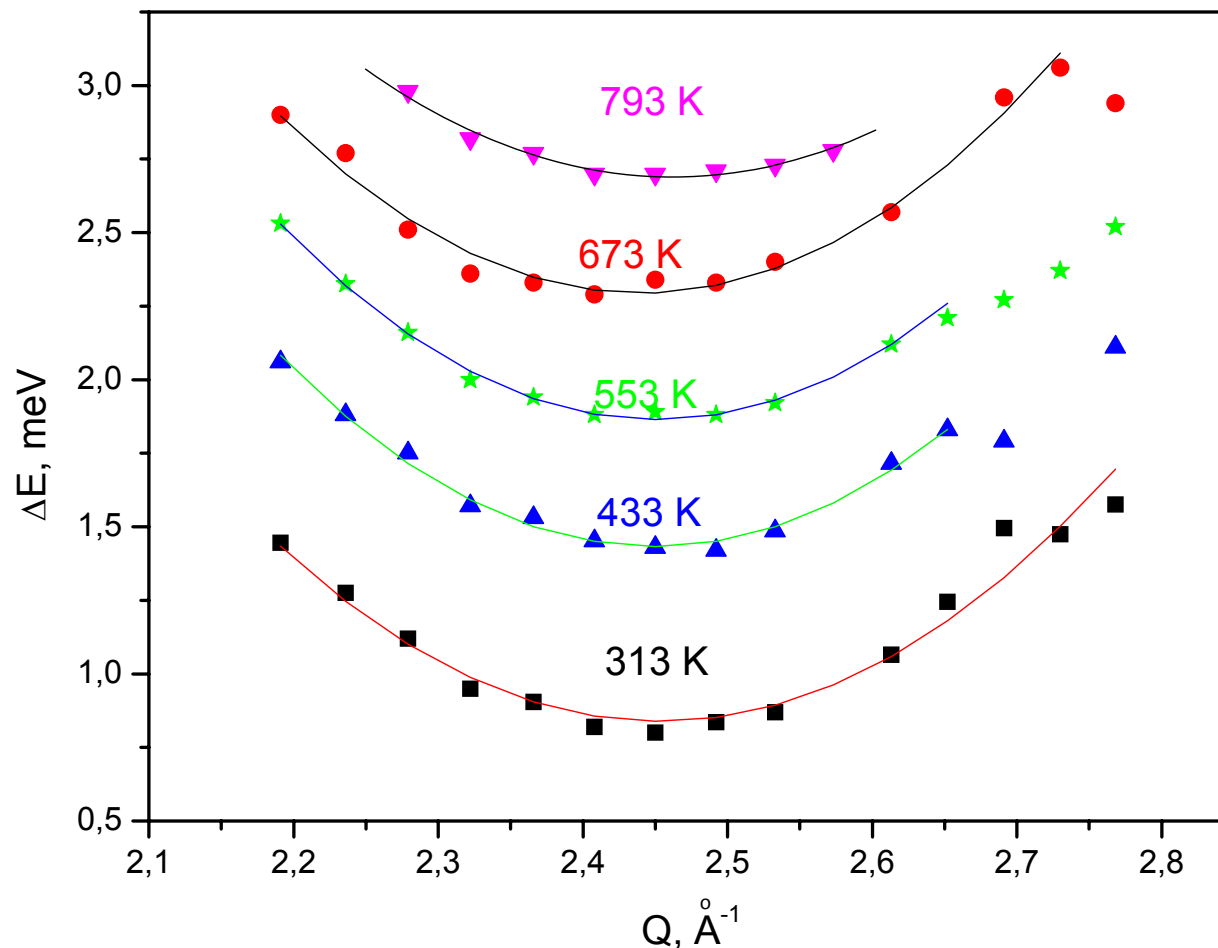


Обработка и анализ экспериментальных данных

Введение в экспериментальные спектры поправок на эффективность детекторов, ослабление нейтронного потока в материале образца и контейнера; удаление эффектов рассеяния на контейнере. Результат: **дважды-дифференциальные сечения (ДДС) рассеяния.**

Разложение ДДС на парциальные составляющие: неупругого некогерентного, многократного, квазиупругого когерентного и квазиупругого некогерентного рассеяния - с помощью программного комплекса SLOWN, позволяющего рассчитывать **отдельные компоненты ДДС** на основе модельной и экспериментальной информации, имеющейся в литературе.

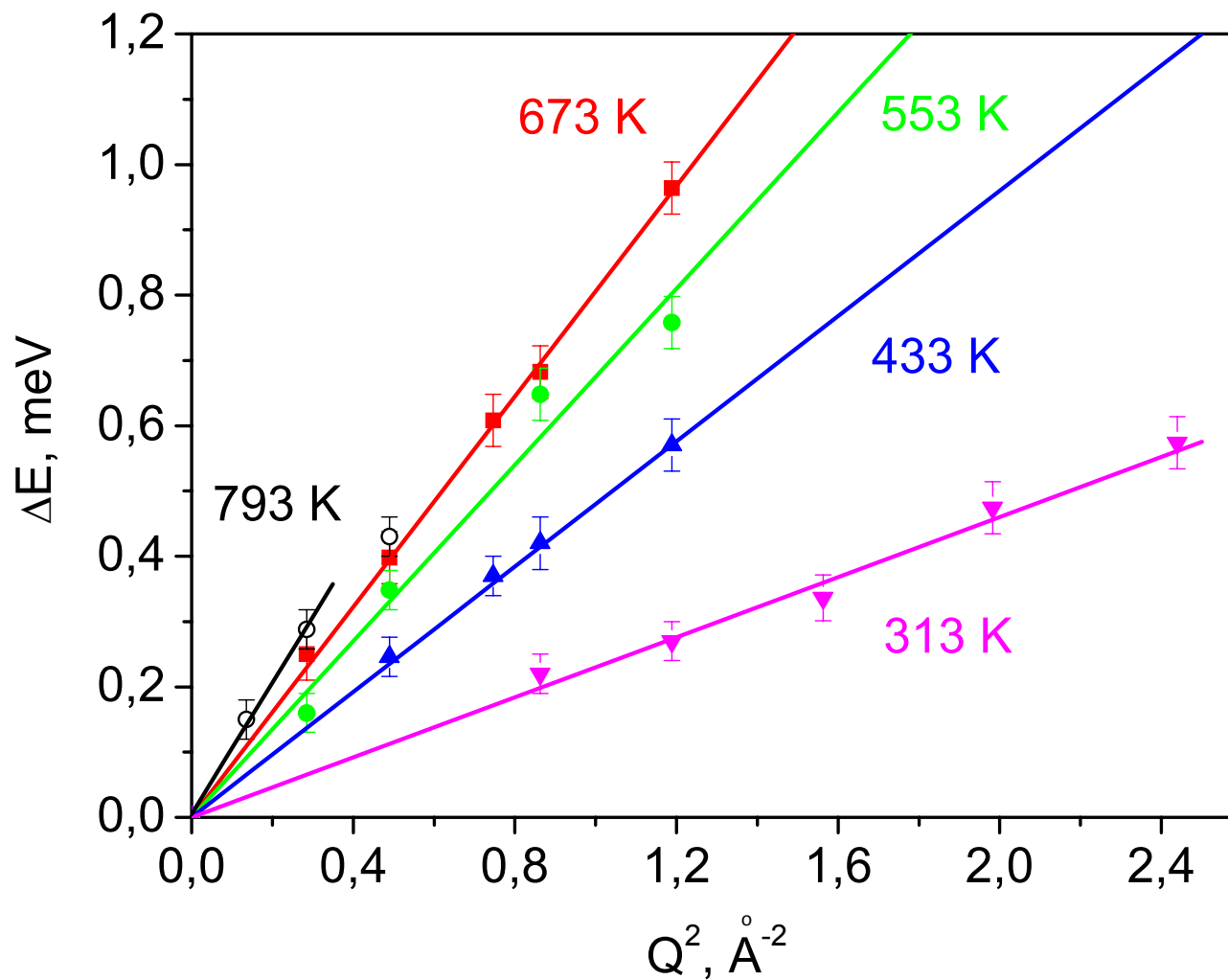
Зависимость полуширины пика когерентного квазиупругого рассеяния жидкого галлия от Q в области главного пика структурного фактора



$$\Gamma_{\text{коз}}/2 = \frac{D_E Q^2}{S(Q)} d(Q\sigma)$$

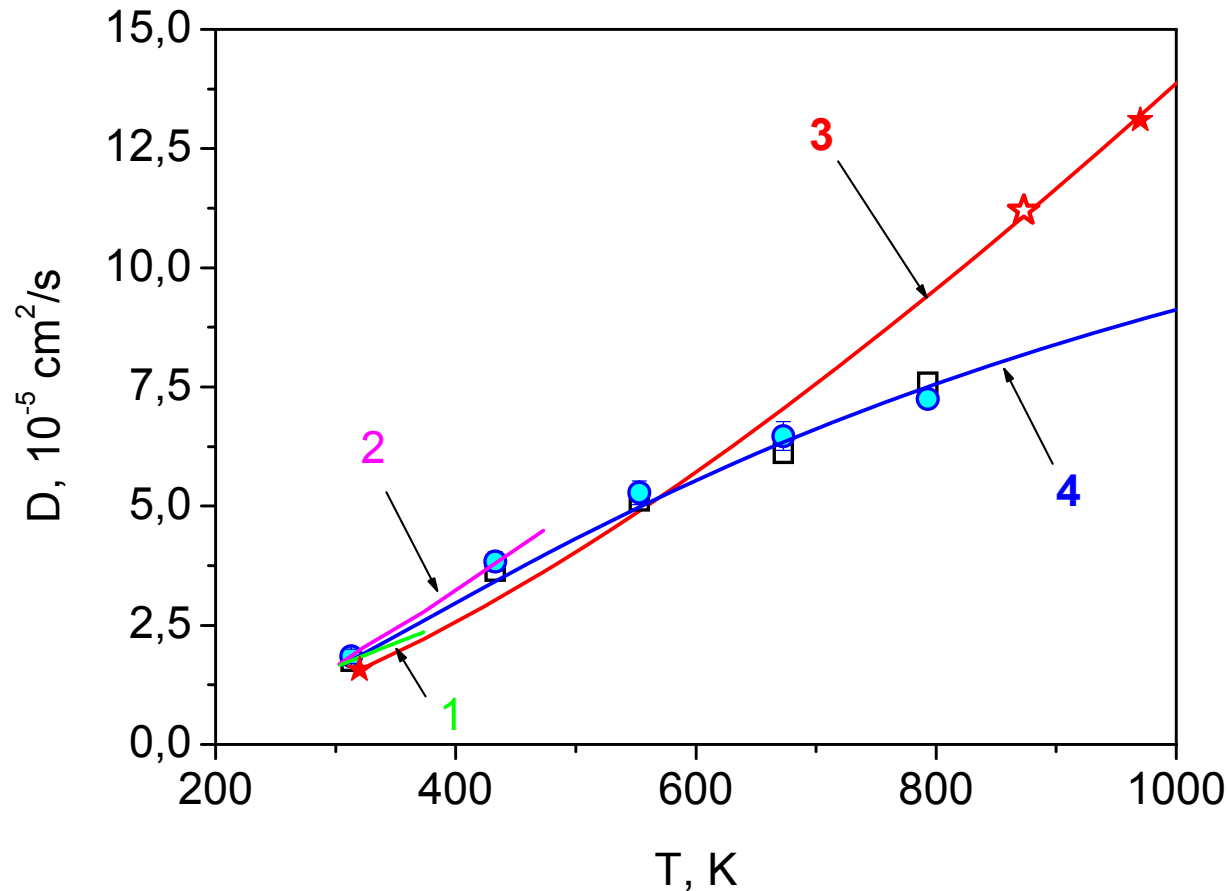
$$d(Q\sigma) = [1 - j_0(Q\sigma) + 2j_2(Q\sigma)]^{-1}$$

Зависимость полуширины пика некогерентного квазиупругого рассеяния от квадрата передачи импульса



$$\Delta E = 2\hbar D Q^2$$

Температурная зависимость коэффициента самодиффузии в жидком галлии



Наши данные: $\circ$ – из когерентного рассеяния; $\square$ – из некогерентного рассеяния.

Литературные данные: 1 – эксперимент [J. Petit, N. Nachtrieb. J. Chem. Phys. **24**, 1027 (1956)];

2 – модель [P. Protopapas et al. J. Chem. Phys. **59** (1), 15 (1973)];

3 – модель [Handbook of Chemistry and Physics, 79th ed. (CRC Press, 1999)];

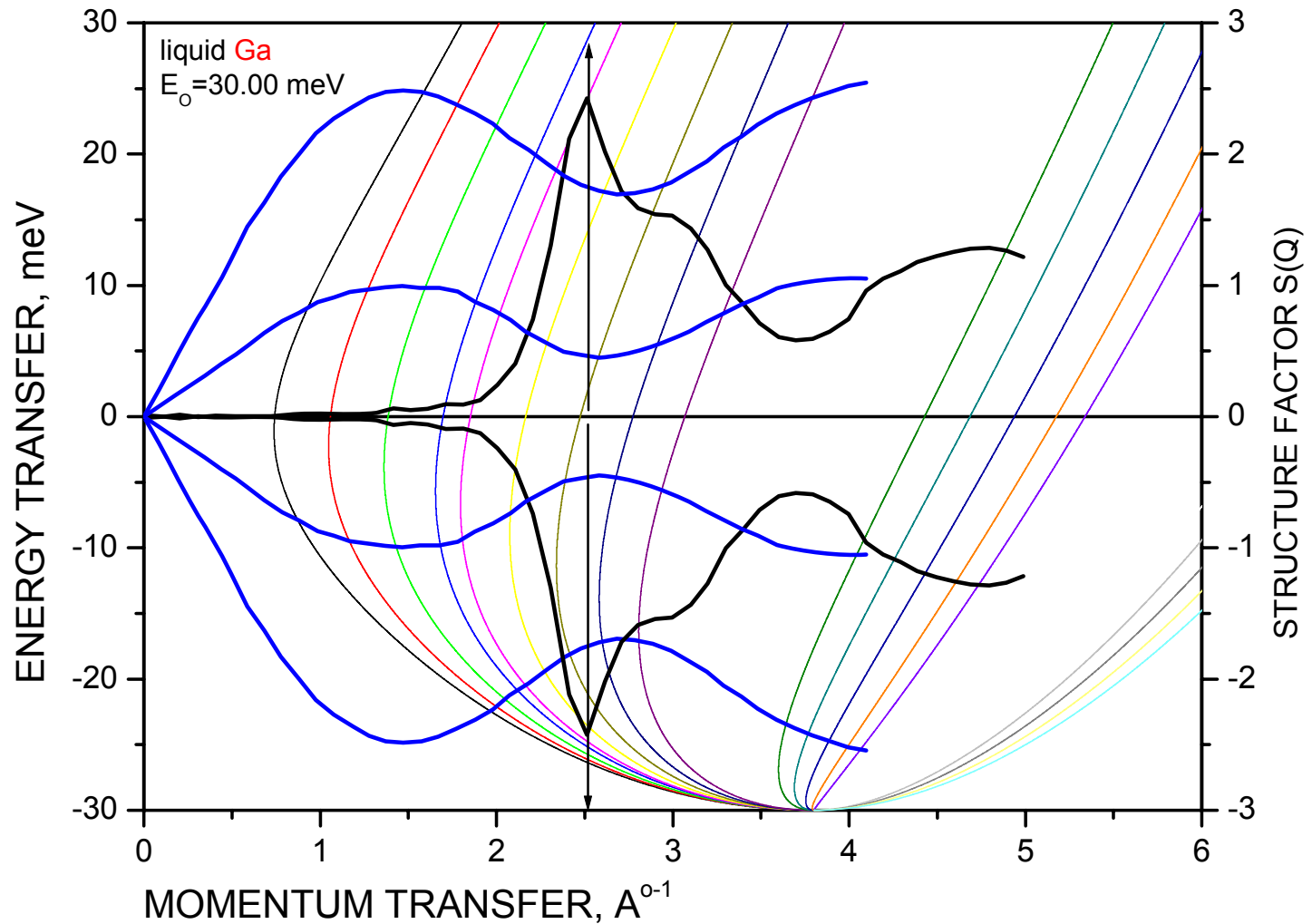
4 – модель [T. Iida et al. Models and Equations for Atomic Transport Coefficients of Liquid Metals: Viscosity and Self-Diffusivity. Materials Science Forum. Vols. **539 – 543**, 2509 (2007)].

Эксперимент по неупругому рассеянию медленных нейтронов на жидком галлии

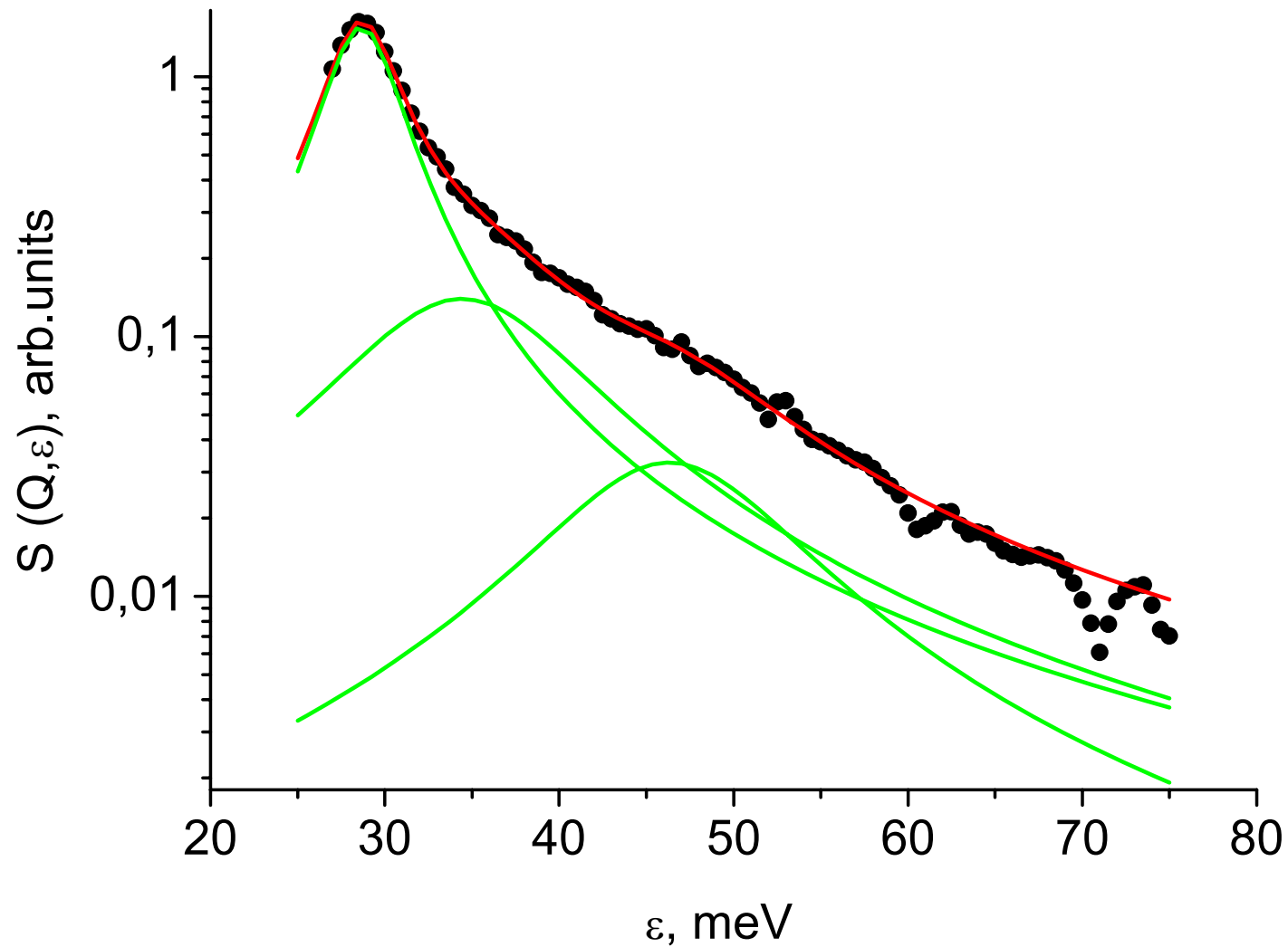
Условия эксперимента

- Сечения рассеяния нейтронов для Ga
 $\sigma_{\text{нк}} = 0.16$ барн, $\sigma_{\text{к}} = 6.68$ барн, $\sigma_{\text{а}} = 2.58$ барн,
- Температуры образца Ga:
- 333, 553 K
- Начальная энергия нейтронов:
 $E_0 = 28.7$ мэВ, $\Delta E_0 = 3.3$ мэВ
-
- Вес образца Ga: 126 г. Контейнер: 25 Nb трубок диаметром 3 мм

Кинематические соотношения для рассеянных нейтронов с начальной энергией 30 мэВ

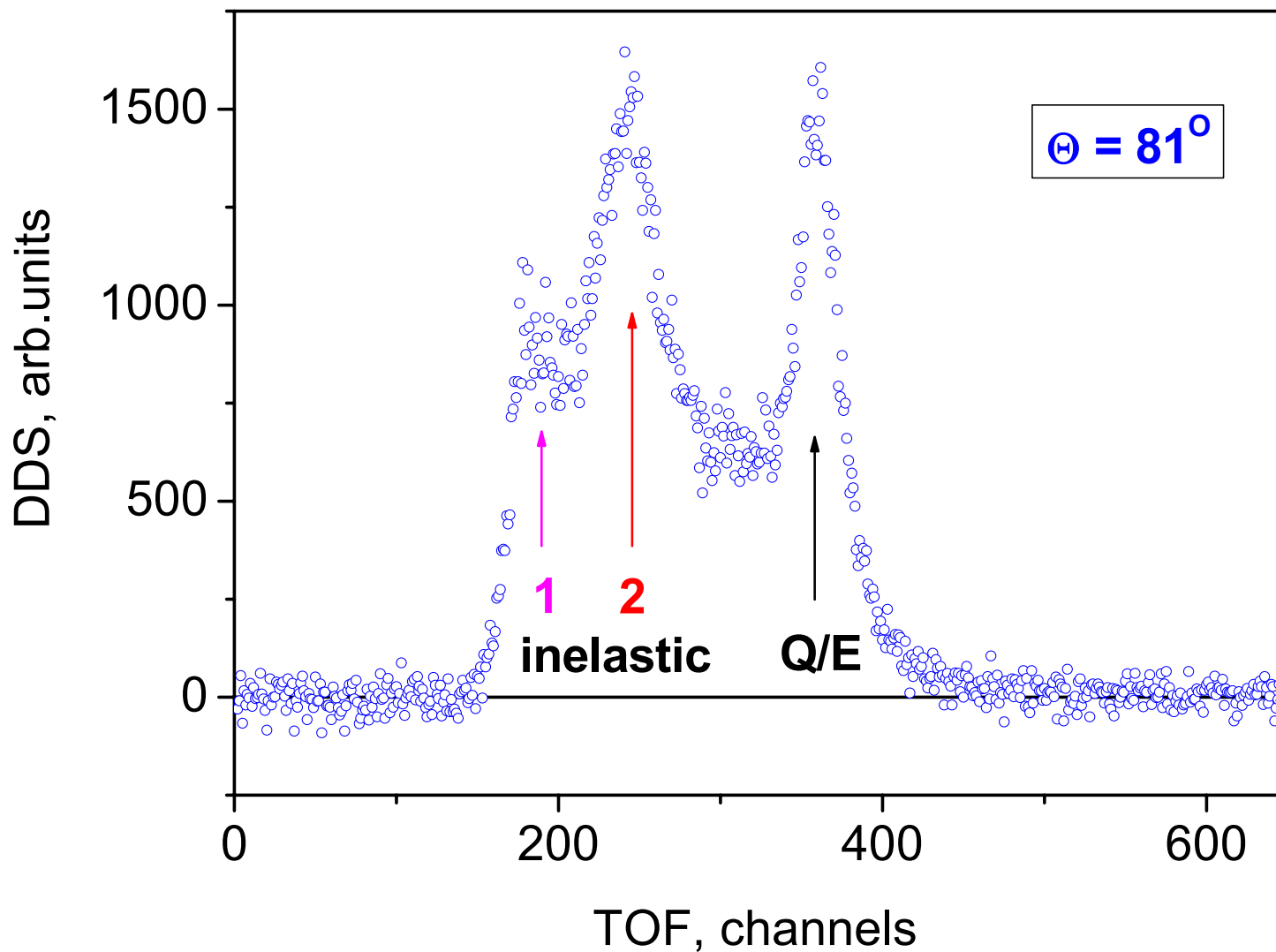


Спектр неупругого рассеяния (угол рассеяния 10°)

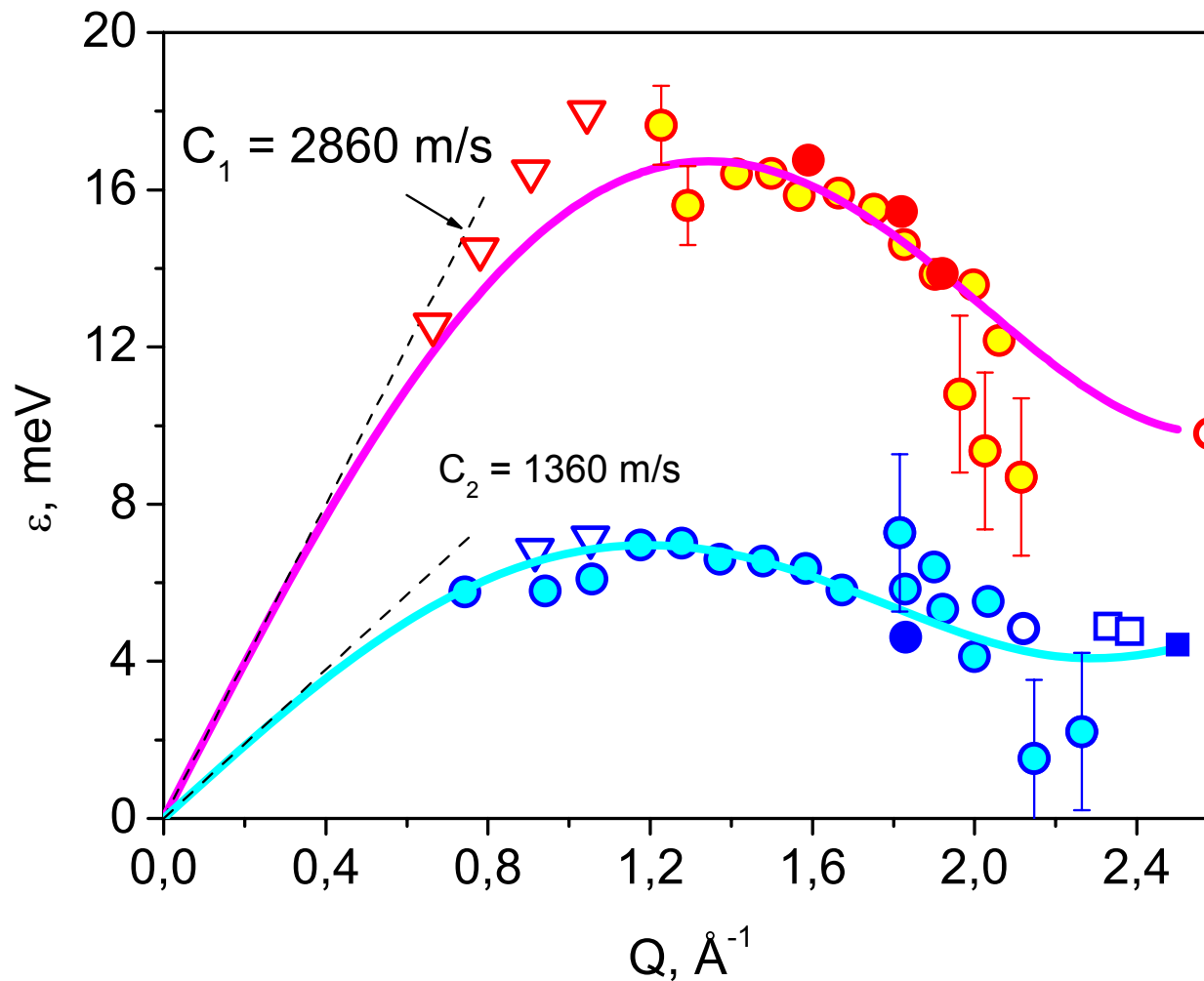


Типичный спектр рассеянных на Ga нейтронов

$E_0 = 3 \text{ мэВ}$

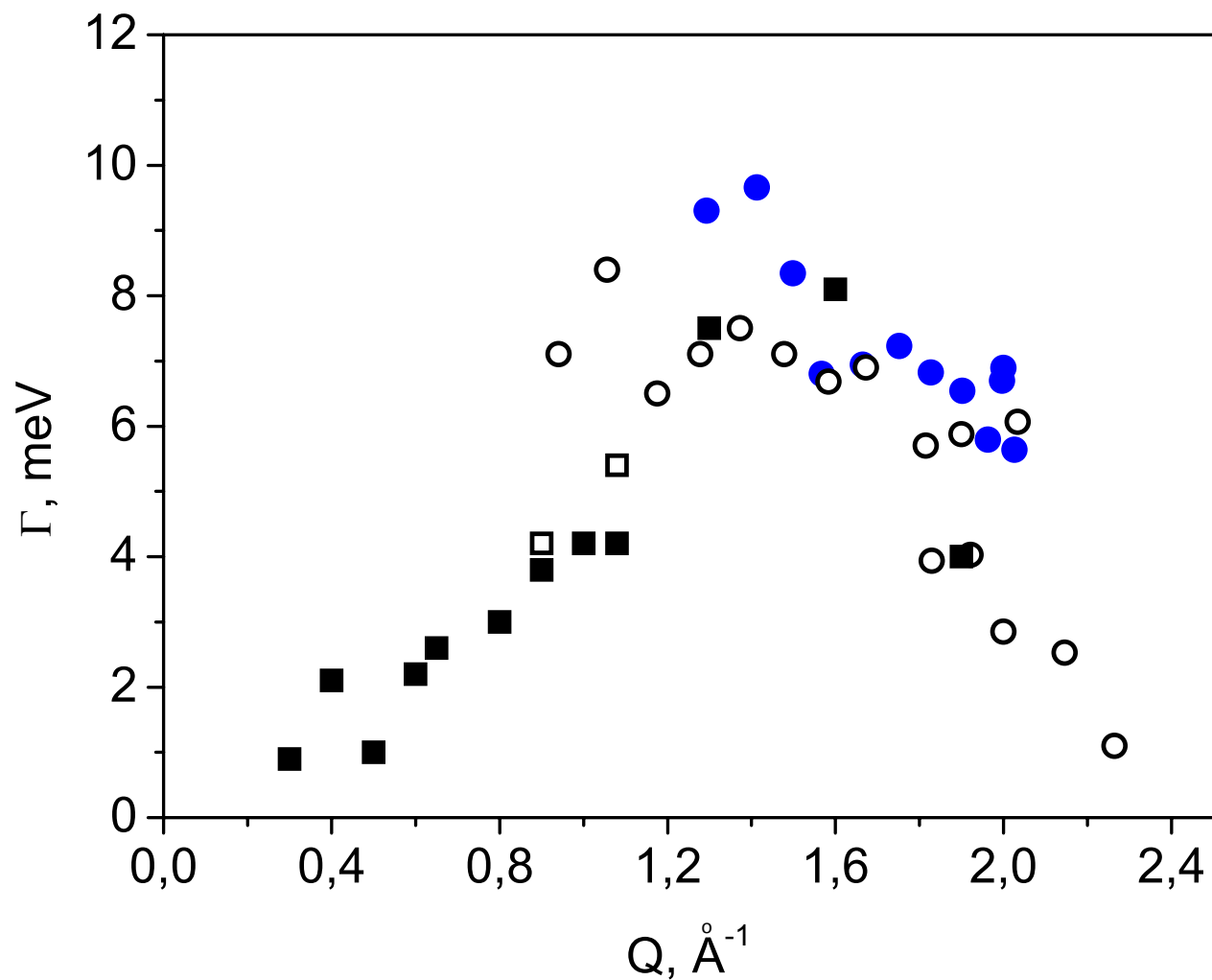


Дисперсионные кривые жидкого галлия при $T = 333\text{ K}$

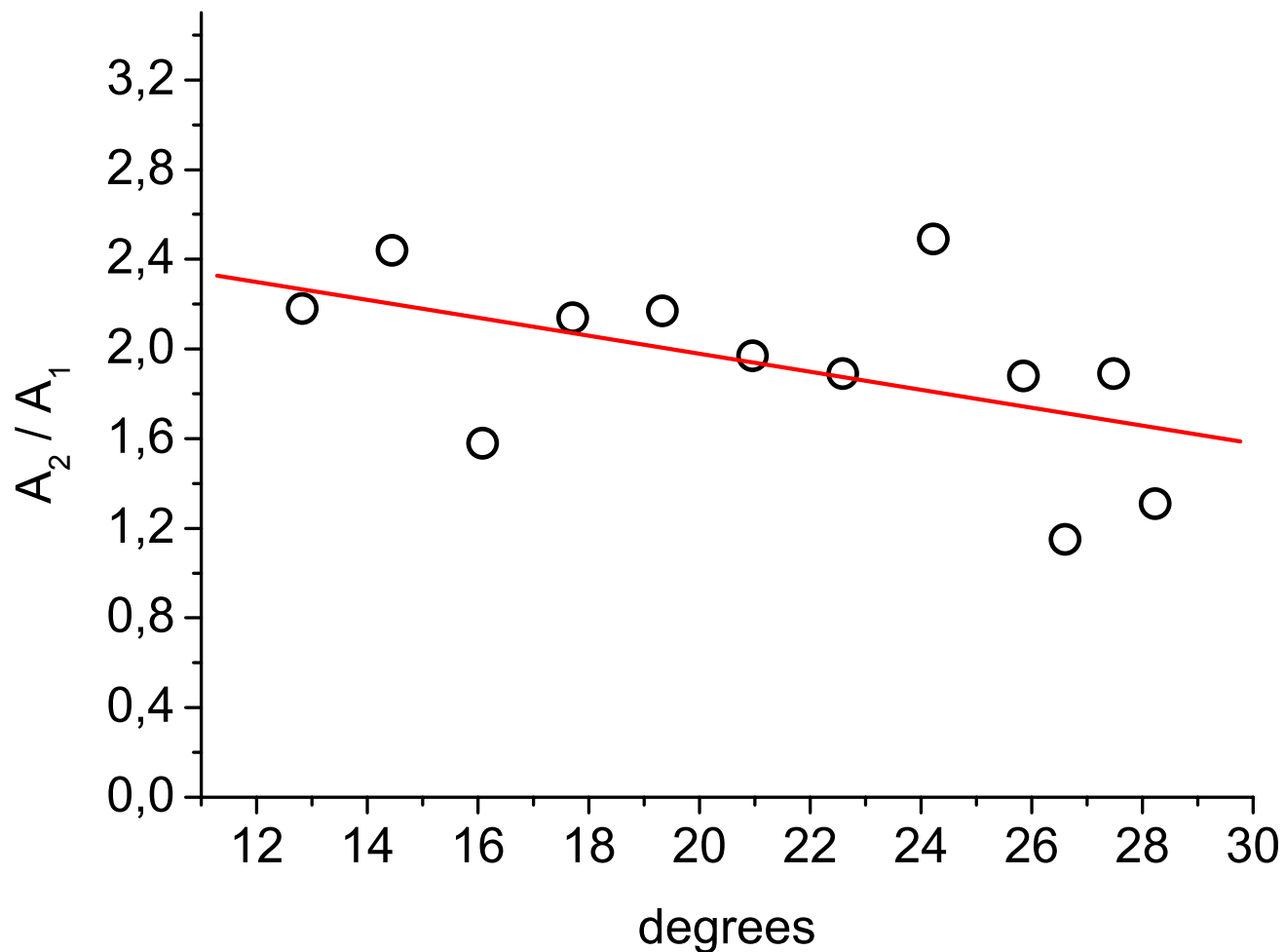


- - I. Padureanu et al. Rom. J. Phys. **48**, 97 (2003)
▽ - S. Hosokawa et al. Phys. Rev. Lett. **102**, 105502 (2009)

Полуширина пиков неупругого рассеяния для верхней и нижней ветви

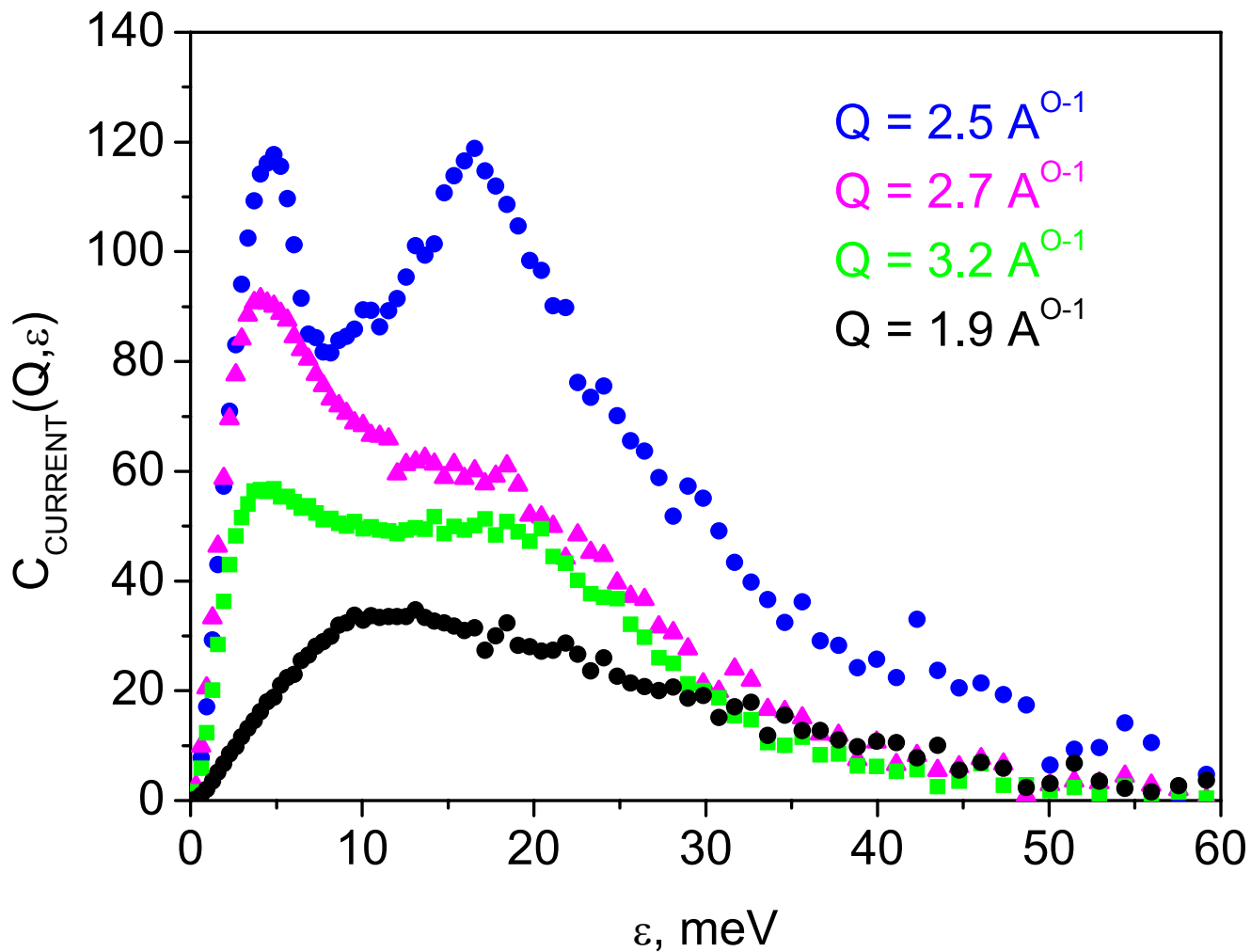


Отношение интенсивностей пиков неупругого рассеяния нижней (A1) и верхней (A2) ветвей



Токовые функции рассеяния

$$C_{CURRENT}(Q, \varepsilon) = \varepsilon^2 S(Q, \varepsilon)$$



ВЫВОДЫ

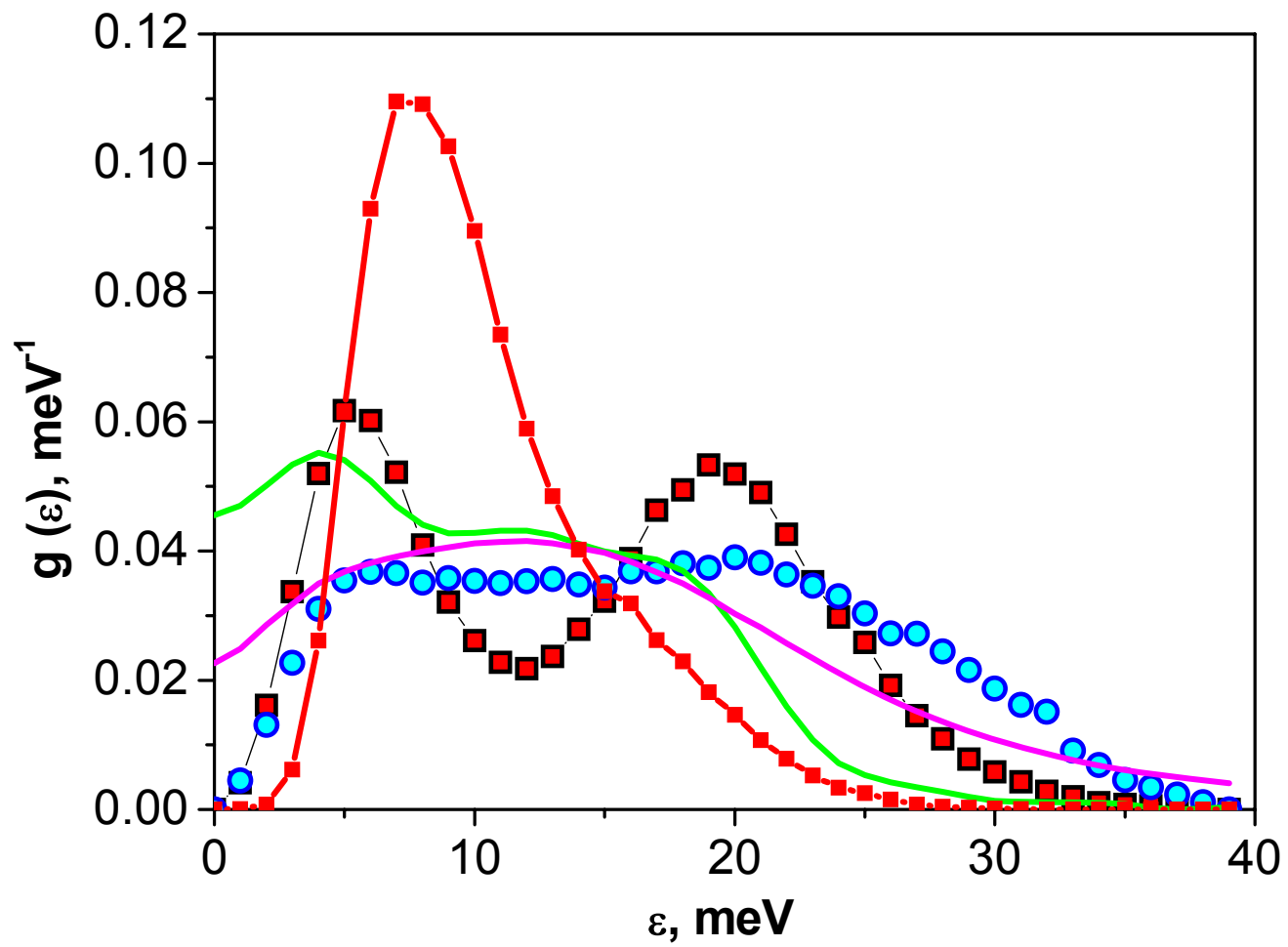
Результаты двух методов анализа квазиупругого когерентного и некогерентного рассеяния, как по величине коэффициента диффузии, так и его температурной зависимости, хорошо согласуются между собой и примерно описываются Аррениусовским законом с постоянной энергией активации ~ 6.6 кДж/моль. Отклонение $D(T)$ от формулы Эйнштейна-Стокса можно связать с начинающейся кластеризацией жидкого Ga.

Проанализирована неупругая часть рассеяния, было установлено наличие **двух компонент** в спектре элементарных возбуждений жидкого галлия при $T = 333\text{K}$.

Согласно факту о наличии конкуренции в жидком галлии между металлической и ковалентной связью, две ветви могут объясняться продольными колебаниями, распространяющимися в плотностях, связанных с M (**мономеры**) и $2M$ (**димеры**).

СПАСИБО

ЗА ВНИМАНИЕ



Дисперсионные кривые для Rb

Н.М. Благовещенский, В.А. Морозов, А.Г. Новиков, В.В. Савостин,
А.Л. Шимкевич. *Поверхность*, 6, 2006, 10

