

Коллективная микродинамика жидкого лития: исследование методом неупругого рассеяния нейтронов

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

Государственный научный центр РФ — Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского, Обнинск, Калужская обл., Россия

E-mail: sav@ippe.ru

Представлен участок дисперсионной кривой коллективных мод жидкого лития, полученный из экспериментальных данных по неупругому рассеянию медленных нейтронов с использованием нейтронного спектрометра ДИН-2ПИ (реактор ИБР-2, ОИЯИ, г. Дубна). Измерения проведены при температуре 500 К ($T_m(\text{Li}) = 453.7 \text{ K}$). Из экспериментальных спектров выделена и проанализирована составляющая когерентного рассеяния. Получена информация о характеристиках коллективных возбуждений в жидком литии.

1. Введение

Коллективные моды атомных колебаний в жидких металлах являются предметом неослабевающего научного интереса [1]. В этой связи можно отметить недавние экспериментальные работы по исследованию коллективных мод в расплавах металлов методом неупругого рассеяния нейтронов (калий [2,3], висмут [4]), а также с использованием рассеяния рентгеновских лучей (литий [5], натрий [6], алюминий [7], калий [8], теллур [9]).

Использование лития в качестве теплоносителя ядерных энергетических установок обуславливает необходимость исследования свойств и особенностей расплава этого металла при разработке технологии теплоносителя и очистки его от примесей [10]. Традиционная технология имеет дело с микросвойствами жидких металлов, опираясь главным образом на феноменологический подход. Очевидно, что дальнейший прогресс и в прикладной области, и в теории жидкого состояния невозможен без детального изучения микродинамики жидкости.

В нашей работе [11] из экспериментальных данных по неупругому рассеянию нейтронов получены основные характеристики атомной динамики жидкого лития: спектр частот колебаний атомов и температурные зависимости величины среднего квадрата смещения атомов лития от времени, величины среднего квадрата амплитуды колебаний атомов, автокорреляционной скоростной функции атомов. В рамках модели Дебая оценена скорость звука в жидком литии.

Основной целью настоящей работы является получение информации о коллективной микродинамике жидкого лития и основных параметров коллективных атомных возбуждений.

2. Эксперимент

Эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов на жидком литии выполнены на двойном времяпролетном спектрометре ДИН-2ПИ [12], работающем от импульсного реактора ИБР-2 (Лаборатория нейтронной физики им. И.М. Франка, ОИЯИ, Дубна). Начальная

энергия нейтронов E_0 составляла 30.8 meV, разрешение по начальной энергии $\Delta E_0/E_0 \sim 10\%$. Образцы расплава Li в форме полого цилиндра внешним диаметром 80 mm, внутренним 65 mm и высотой 110 mm помещались в контейнеры из армо-железа толщиной 0.15 mm. Использование этого материала позволило минимизировать эффекты рассеяния от контейнера при данной E_0 . Литий представлял собой изотоп Li^7 с примесью 0.2 at.% Li^6 .

Экспериментальные данные, приведенные в настоящей работе, получены при температуре 500 К ($T_m(\text{Li}) = 453.7 \text{ K}$ [13]).

3. Обработка экспериментальных данных и результаты

Методика измерений и первичная обработка данных были стандартными для экспериментов такого рода на спектрометре ДИН-2ПИ [14].

Для получения дваждыдифференциальных сечений (ДДС) рассеяния нейтронов из измеренных спектров в них вводились поправки на ослабление пучка рассеянных нейтронов за счет прохождения через образец в присутствии материала контейнера, прохождения через материал контейнера в присутствии образца, а также на самоэкранирование пустого контейнера. Учитывалась энергетическая зависимость эффективности детектора. Для уменьшения статистической ошибки измерений наблюдаемые спектры рассеяния нейтронов на пустом термостате аппроксимировались полиномом и затем вычитались из измерений с образцом.

Экспериментальные ДДС рассеяния были проанализированы с использованием программного комплекса SLOWN [15]. Составляющие однофононного некогерентного и многофононного рассеяния были рассчитаны с использованием спектра частот колебаний атомов жидкого лития, найденного методом молекулярно-динамического моделирования [16]. Составляющая квазиупругого рассеяния, несущая в себе информацию о процессе диффузии в изучаемой жидкости, рассчитана из данных работы [17], в которой она подробно проанализирована. Составляющая однофононного когерентного

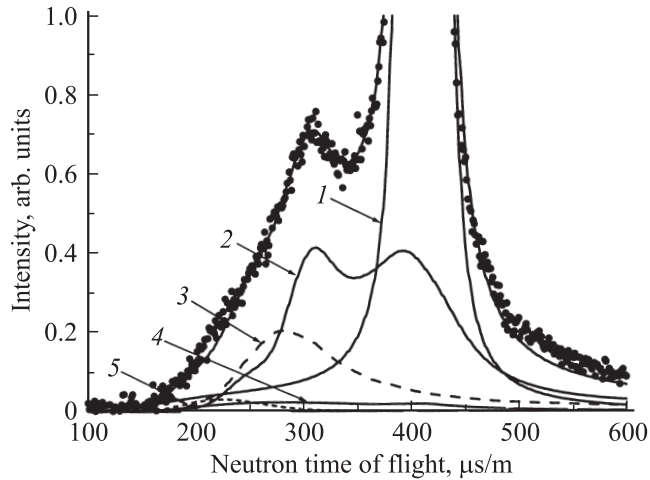


Рис. 1. Экспериментальное ДДС рассеяния на жидком литии (точки) и его составляющие: 1 — квазиупругое некогерентное рассеяние, 2 — когерентное рассеяние, 3 — неупругое некогерентное рассеяние, 4 — многофононное рассеяние, 5 — многократное рассеяние. Угол рассеяния $\theta = 16^\circ$.

рассеяния рассчитана с использованием вязкоупругой модели [18]. На основе вклада однофононного рассеяния была оценена составляющая многократного рассеяния, которая вносит существенный вклад в полное ДДС рассеяния. Полное расчетное ДДС как сумма указанных составляющих подгонялось под экспериментальное ДДС с использованием методики [15]. Пример экспериментального ДДС рассеяния и его расчетных составляющих показан на рис. 1.

Составляющая когерентного однофононного рассеяния, несущая в себе информацию о коллективной атомной динамике, была получена с помощью вычитания из экспериментального ДДС рассеяния составляющих неупругого и квазиупругого рассеяния, а также многофононного и многократного вкладов.

ДДС однофононного когерентного рассеяния выражается следующим образом:

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \right)_{\text{coh}} = \frac{\sigma_{\text{coh}} k}{4\pi k_0} \exp \left[-\frac{\hbar^2 Q^2}{2m} \langle u^2 \rangle^{1/2} \right] S_{\text{coh}}(Q, \omega). \quad (1)$$

Здесь Ω — телесный угол рассеяния, $\hbar\omega$ — изменение энергии нейтрона при рассеянии, σ_{coh} — микросечение когерентного рассеяния, k_0 и k — волновые векторы падающего и рассеянного нейтронов, Q — изменение волнового вектора нейтрона при рассеянии, m — масса рассеивающего атома, $\langle u^2 \rangle^{1/2}$ — среднеквадратичная амплитуда колебаний атома.

Так называемый закон когерентного рассеяния в рамках вязкоупругой модели [18] имеет вид

$$S_{\text{coh}}(Q, \omega) = \frac{S(Q)}{\pi} \frac{\omega_0^2 (\omega'_L{}^2 - \omega_0^2) \tau(Q)}{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + [\omega\tau(Q)(\omega^2 - \omega'_L{}^2)]}, \quad (2)$$

где

$$\omega_0^2(Q) = \frac{k_B T Q^2}{m S(Q)}, \quad (3)$$

$$\tau(Q) = \frac{1}{2} \left(\frac{\pi}{\omega_L^2 - \omega_0^2} \right)^{1/2}, \quad (4)$$

$$\omega_L^2(Q) = \frac{3k_B T Q^2}{m} + \omega'_L{}^2(Q), \quad (5)$$

$$\omega'_L{}^2(Q) = \frac{n}{m} \int g(r) [1 - \cos(\mathbf{Qr})] \frac{\partial^2 U}{\partial r^2} dr. \quad (6)$$

Здесь k_B — постоянная Больцмана, $S(Q)$ — статический структурный фактор, $g(r)$ — функция радиального распределения, n — плотность атомов, $U(r)$ — парный потенциал межчастичного взаимодействия. В предположении, что $g(r) \partial^2 U / \partial r^2 \approx A \delta(r - r_0)$ [19], где A — константа, выражение (6) может быть представлено в виде

$$\omega_L(Q) = \omega_E \left[1 - \frac{3 \sin(Qr_0)}{Qr_0} - \frac{6 \cos(Qr_0)}{(Qr_0)^2} + \frac{6 \sin(Qr_0)}{(Qr_0)^3} \right]^{1/2}, \quad (7)$$

где r_0 — расстояние, соответствующее минимуму потенциала межчастичного взаимодействия, ω_E — частота Эйнштейна. Величина $\hbar\omega_E$ имеет смысл средней энергии коллективных мод в жидкости.

Законы когерентного рассеяния, полученные на разных углах, были преобразованы в равномерную энергетическую шкалу и проинтерполированы для нескольких значений Q . Пример закона когерентного рассеяния в представлении $Q = \text{const}$ показан на рис. 2. Каждая из этих кривых описывалась суперпозицией двух лоренцианов, свернутых с функцией разрешения спектрометра, максимум одного из которых фиксировался при $\hbar\omega = 0$,

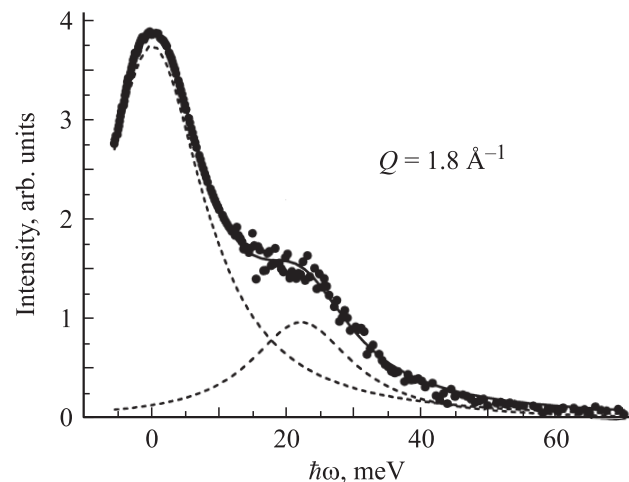


Рис. 2. Закон когерентного рассеяния медленных нейтронов для жидкого лития. Точки — эксперимент, сплошная кривая — расчетное описание суммой лоренцианов (показаны штриховыми линиями).

положение же второго давало соответствующую точку дисперсионной кривой (рис. 3, *a*). На этом рисунке наши экспериментальные данные сравниваются с аналогичными данными для расплава лития, полученными как нейтронным методом [20], так и методом неупругого рассеяния рентгеновских лучей [21]. В пределах экспериментальных ошибок наблюдается качественное согласие наших результатов с данными других авторов.

На рис. 3, *b* показано описание наших экспериментальных точек выражением (7) с параметрами $\hbar\omega_E = 22.4 \pm 0.4$ meV и $r_0 = 3.12 \pm 0.8$ Å. Необходимо отметить, что расстояние максимума межатомных корреляций r_0 совпадает с удвоенным радиусом атома лития $r = 1.56$ Å.

Участок дисперсионной кривой в гидродинамической области (при $Q \rightarrow 0$) позволяет оценить скорость распространения коллективных возбуждений в жидком литии: $C = 5690$ m/s. Но поскольку в области малых Q у нас нет экспериментальных данных, эта оценка носит

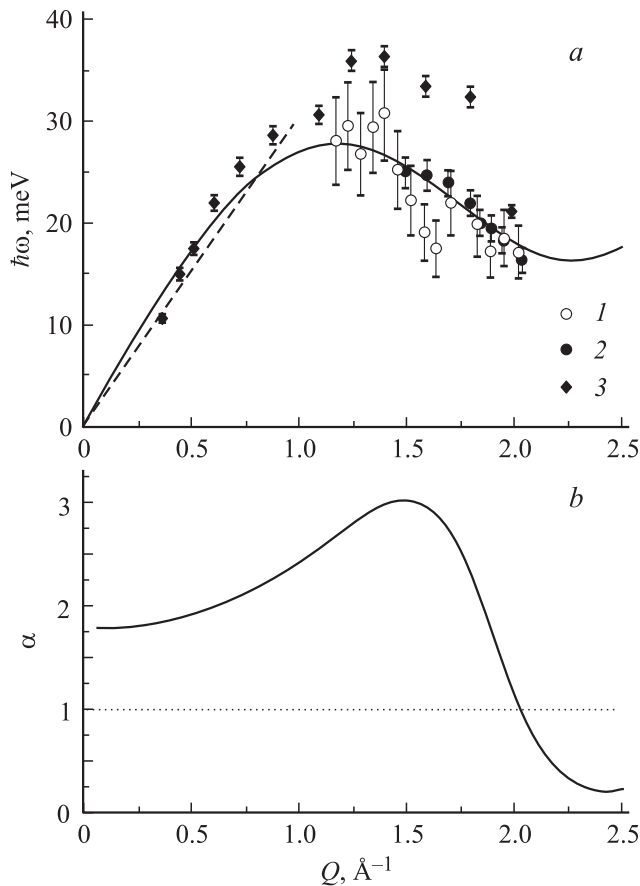


Рис. 3. *a*) Дисперсионные зависимости для жидкого лития, полученные методом неупругого рассеяния нейтронов (1 — данные [20], 2 — настоящей работы) и методом неупругого рассеяния рентгеновских лучей (3 — данные [21]). Сплошная кривая — расчет по формуле (7), пунктир — адиабатическая скорость звука: 4554 m/s [13]. *b*) Условие существования коллективных мод (см. (8)) в жидком литии в рамках вязкоупругого приближения [18].

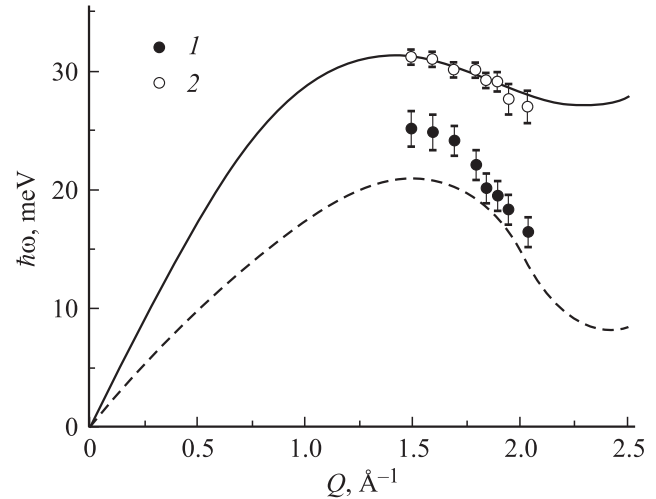


Рис. 4. Участок дисперсионной кривой для жидкого лития в „плотностном“ (1) и „токовом“ (2) представлениях. Сплошная кривая — расчет по формуле (5), штриховая — ω_0 (см. (3)).

сугубо качественный характер. Видно, что полученное значение C превышает известное справочное значение адиабатической скорости звука: 4554 m/s [13]. Это превышение, называемое в литературе „положительной дисперсией распространения коллективных мод“, согласуется с аналогичными известными данными для жидких щелочных металлов [1].

Вязкоупругая модель [18] определяет условие существования коллективных мод

$$\alpha(Q) = 3\omega_0^2/\omega_L^2 \geq 1, \quad (8)$$

расчет которого для случая жидкого лития показан на рис. 3, *b*. Видно, что часть дисперсионной кривой, полученная в наших экспериментальных условиях, приходится на область Q , где коллективные моды существовать уже практически не могут.

Еще одним вариантом дисперсионной зависимости коллективных мод в жидкости является представление, в котором для ее построения используется положение пиков функции корреляции продольных токов

$$J_L = (\omega^2/Q^2)S_{\text{coh}}(Q, \omega). \quad (9)$$

Необходимо отметить, что токовая функция $J_L(Q)$ имеет максимум при любых Q в отличие от функции $S_{\text{coh}}(Q, \omega)$. При малых Q дисперсионные кривые, построенные с использованием $S_{\text{coh}}(Q, \omega)$ и $J_L(Q, \omega)$, практически совпадают.

На рис. 4 показан полученный нами участок дисперсионной кривой как в „плотностном“, так и в „токовом“ представлении.

На рис. 5, 6 представлена обобщающая информация, относящаяся к характеристикам коллективных мод в жидких щелочных металлах. На рис. 5 показана мак-

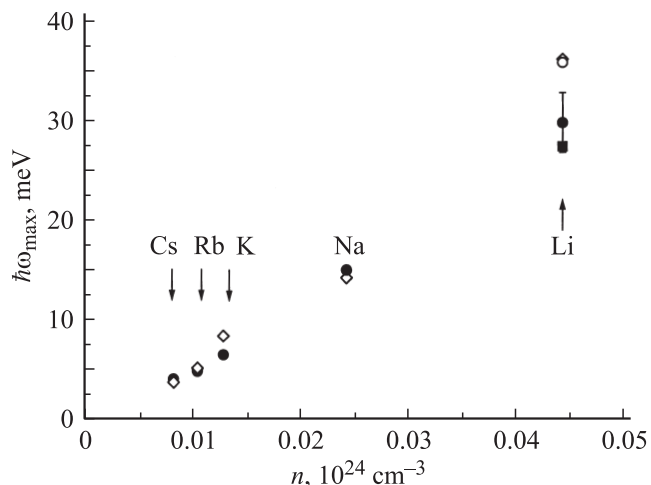


Рис. 5. Максимальная энергия коллективных мод в жидких щелочных металлах вблизи точки плавления. Темные кружки — эксперимент: Cs [22], Rb [23], K [24], Na [6], Li [20]; квадрат — данные настоящей работы; светлый кружок — эксперимент [21]; ромбы — молекулярно-динамический расчет [25].

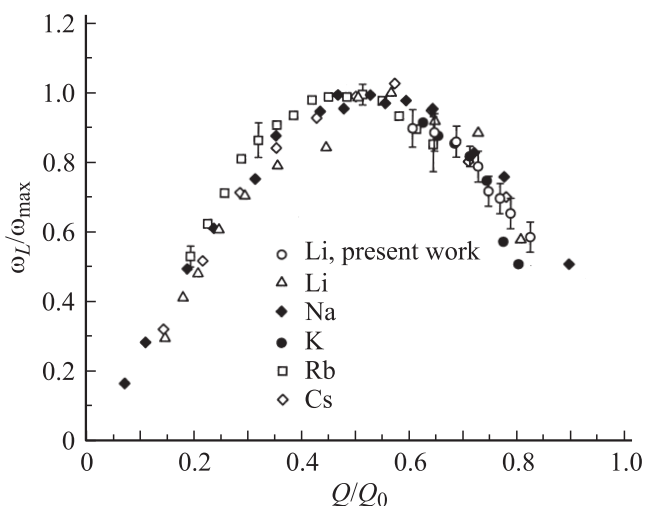


Рис. 6. Обобщенная дисперсионная зависимость для жидких щелочных металлов в приведенных координатах: Li [21], Na [6], K [24], Rb [23], Cs [22].

симальная энергия коллективных мод как функция их атомной плотности. Как и следовало ожидать, максимальная атомная плотность в литии соответствует и максимальной энергии коллективных мод в этой жидкости. На рис. 6 в приведенных единицах показана обобщенная дисперсионная кривая для жидких щелочных металлов из экспериментальных работ. Видно, что наш результат не противоречит общей картине. С точностью до экспериментального разброса вся совокупность точек образует единую дисперсионную кривую, что подтверждает еще раз вывод о микродинамическом подобии жидких щелочных металлов [25].

4. Заключение

Полученный в настоящей работе участок дисперсионной кривой коллективных атомных возбуждений для расплава лития в пределах ошибок эксперимента согласуется с результатами других авторов.

Обобщающая информация, относящаяся к характеристикам коллективных мод в жидких щелочных металлах — максимальная энергия коллективных мод как функция атомной плотности, а также обобщенная дисперсионная кривая для жидких щелочных металлов, построенная с использованием полученных нами данных для жидкого лития, — подтверждает вывод о микродинамическом подобии жидких щелочных металлов.

Список литературы

- [1] T. Scopigno, G. Ruocco, F. Sette. *Rev. Mod. Phys.* **77**, 881 (2005).
- [2] A. Monaco, T. Scopigno, P. Benassi, A. Giungi, G. Monaco, M. Mardone, G. Ruocco, M. Sampoli. *J. Non-Cryst. Solids* **353**, 3154 (2007).
- [3] L.E. Bove, B. Dorner, C. Petrillo, S. Sacchetti, J.-B. Suck. *Phys. Rev. B* **68**, 024 208 (2003).
- [4] L. Sani, L.E. Bove, C. Petrillo, S. Sacchetti. *J. Non-Cryst. Solids* **353**, 3139 (2007).
- [5] T. Scopigno, U. Balucani, G. Ruocco, F. Sette. *J. Phys.: Cond. Matter* **12**, 8009 (2000).
- [6] W.-C. Pilgrim, S. Hosokawa, H. Saggau, H. Sinn, E. Burkel. *J. Non-Cryst. Solids* **250–252**, 96 (1999).
- [7] T. Scopigno, U. Balucani, G. Ruocco, F. Sette. *J. Non-Cryst. Solids* **312–314**, 121 (2002).
- [8] A. Monaco, T. Scopigno, P. Benassi, A. Giungi, G. Monaco, M. Mardone, G. Ruocco, M. Sampoli. *J. Chem. Phys.* **120**, 8089 (2004).
- [9] M.D. Ruiz-Martin, M. Jimenez-ERuiz, F.J. Bermejo, R. Fernandez-Perea. *J. Non-Cryst. Solids* **353**, 1005 (2007).
- [10] В.Н. Михайлов, В.А. Евтихин, И.Е. Люблинский. А.В. Вертков, А.Н. Суманов. *Литий в термоядерной и космической энергетике XXI века. Энергоатомиздат, М.* (1999).
- [11] Н.М. Благовещенский, В.А. Морозов, А.Г. Новиков, М.А. Пашнев, В.В. Савостин, А.Л. Шимкевич. *Кристаллография* **52**, 481 (2007).
- [12] User guide. Neutron experimental facilities for condensed matter investigations at JINR Press, Dubna (1997). P. 25.
- [13] Handbook of thermodynamic and transport properties of alkali metals / Ed. R.W. Ohse. Blackwell, Oxford (1985). 985 p.
- [14] А.Г. Новиков, Ю.В. Лисичкин, Н.К. Фомичев. *ЖФХ* **60**, 2233 (1986).
- [15] Ю.В. Лисичкин, А.Г. Довбенко, Б.А. Ефименко, А.Г. Новиков, Л.Д. Смиреникина, С.И. Тихонова. *Вопр. атом. науки и техники. Сер. Ядерные константы* **2**, 33, 12 (1979).
- [16] И.Ю. Шимкевич, А.Л. Шимкевич. МДММК (Молекулярная динамика и метод Монте-Карло) — программы для построения кристаллических и неупорядоченных систем. Препринт ФЭИ-2524. Обнинск (1996) 26 с.

- [17] N.M. Blagoveshchenskii, V.A. Morozov, A.G. Novikov, M.A. Pashnev, V.V. Savostin, A.K. Shinkevich. *J. Phys.: Cond. Matter* **20**, 104 201 (2008).
- [18] S.W. Lovesey. *J. Phys. C* **4**, 3057 (1971).
- [19] J. Nubbard, J.L. Beeby. *J. Phys. C* **2**, 556 (1969).
- [20] P.H. K. de Jong, P. Verkerk, L.A. de Graaf. *J. Non-Cryst. Solids* **156–158**, 48 (1993).
- [21] H. Sinn, F. Dette, U. Bergman, Ch. Halcoussis, M. Krisch, R. Verbeni, E. Burkel. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1715 (1997).
- [22] T. Bodensteiner, C. Morkel, P. Müller, W. Gläser. *J. Non-Cryst. Solids* **117–118**, 116 (1990).
- [23] J.R.D. Copley, J.M. Rowe. *Phys. Rev. Lett.* **32**, 49 (1974).
- [24] A.G. Novikov, V.V. Savostin, A.L. Shimkevich, M.V. Zaezjev. *Physica B* **234–236** 359 (1997).
- [25] U. Balucani, A. Torcini, R. Vallaure. *Phys. Rev. B* **47**, 3011 (1993).