

УДК 539.125.5

ВЛИЯНИЕ АППАРАТУРНЫХ УСЛОВИЙ НА ПАРАМЕТРЫ ОДНОФОНОННЫХ РЕЗОНАНСОВ, ОБУСЛОВЛЕННЫХ ДВУКРАТНЫМ РАССЕЯНИЕМ НЕЙТРОНОВ

И. Л. Ждахин, В. И. Бобровский, Б. Н. Гоцицкий, Ю. Н. Михайлов

Исследуется влияние вариации параметров разрешения нейтронного спектрометра на величину двукратных вкладов в однофононные нейтронные пики. Ранее в ряде экспериментальных работ было установлено, что такие вклады могут быть значительными. В качестве модельных систем использовались фононы в ГЦК — металлах: свинце и сплаве $\text{Fe}_{72}\text{Ni}_{22}\text{Mn}_6$. Результаты численных расчетов показали, что величина двукратных вкладов сильно варьируется в разных веществах и для разных фононов и существенно зависит от разрешения прибора. При этом влияние вертикальных параметров разрешения принципиально отличается для одно- и двукратных неупругих пиков. Этот эффект может быть использован для экспериментального выявления двукратных вкладов.

В работах [1-3] было показано, что процессы двукратного упруго-неупругого или неупруго-упругого рассеяния нейтронов могут существенно сказываться на результатах экспериментов по исследованию характеристик фононов. С одной стороны, в результате таких процессов могут возникать неупругие пики в позициях, запрещенных поляризационными условиями, с другой — возможно искажение формы линии измеряемых пиков. Экспериментально [1, 2] было выяснено, что величина двукратных эффектов определяется мозаичностью образца и разрешением прибора. В работе [3] был предложен метод и развиты алгоритмы для вычисления двукратных вкладов. На основании этого метода в настоящей работе проводится теоретическое исследование влияния аппаратных условий на параметры двукратных резонансов.

Настройка нейтронного спектрометра на исследование фонона с волновым вектором \mathbf{q}_0 и частотой $\omega_j(\mathbf{q}_0)$ означает выполнение условий

$$\mathbf{Q}_0 = \mathbf{k}_I - \mathbf{k}_F = \mathbf{b}_0 + \mathbf{q}_0, \quad \omega_0 = \frac{\hbar}{2m} (k_I^2 - k_F^2) = \omega_j(\mathbf{q}_0), \quad (1)$$

где величины \mathbf{Q}_0 и ω_0 называются вектором и частотой передачи соответственно, \mathbf{k}_I , \mathbf{k}_F — волновые векторы падающего на образец и рассеянного нейтронов, \mathbf{b}_0 — некоторый вектор обратной решетки.

Для возникновения двукратного упруго-неупругого процесса необходимо, чтобы нашелся вектор обратной решетки \mathbf{b}_e , удовлетворяющий условиям

$$\mathbf{k}_I - \mathbf{k}'_I = \mathbf{b}_e, \quad \mathbf{k}'_I - \mathbf{k}_I = \mathbf{b}_i + \mathbf{q}_0,$$

$$k_I = k'_I, \quad \frac{\hbar}{2m} (k_I^2 - k_F^2) = \omega_j(\mathbf{q}_0), \quad \mathbf{b}_0 = \mathbf{b}_e + \mathbf{b}_i. \quad (2)$$

Здесь \mathbf{b}_e , \mathbf{b}_i — волновые векторы обратной решетки, фигурирующие на упругой и неупругой стадиях процесса; \mathbf{k}'_I — промежуточный волновой вектор нейтрона.

Аналогичные равенства могут быть написаны и для неупруго-упругих процессов. Следует отметить, что поляризационный множитель неупругой стадии двукратного процесса $(\mathbf{q}_0 + \mathbf{b}_i; \mathbf{e}_{ij})^2$ может быть отличен от 0, в то время как для

однократного процесса $(\mathbf{q}_0 + \mathbf{b}_0; \mathbf{e}_{gf})^2 = 0$. Это и объясняет появление запрещенных пиков.

Реальный нейтронный спектрометр обладает конечным разрешением, которое может быть охарактеризовано с помощью фильтрационных функций монохроматора и анализатора

$$B_M(\mathbf{k}_i) = B_M^0 \exp \left\{ -\frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta}^M \frac{M}{a_{\alpha\beta}} x_{i\alpha} x_{i\beta} \right\}, \quad (3)$$

$$B_A(\mathbf{k}_f) = B_A^0 \exp \left\{ -\frac{1}{2} \sum_{\alpha\beta}^A a_{\alpha\beta} x_{f\alpha} x_{f\beta} \right\}, \quad (4)$$

где

$$\mathbf{x}_i = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_F, \quad \mathbf{x}_f = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_F.$$

Поверхностями уровня этих функций являются эллипсоиды в K_i и K_f пространстве

$$\sum_{\alpha\beta=1}^3 \sum_{i\alpha}^M x_{i\alpha} x_{i\beta} = 1, \quad \sum_{\alpha\beta=1}^3 \sum_{f\alpha}^A a_{\alpha\beta} x_{f\alpha} x_{f\beta} = 1. \quad (5)$$

Эллипсоиды (5) обычно рассматриваются как наглядное представление областей в \mathbf{k}_i и \mathbf{k}_f пространствах, которые при настройке прибора на $\mathbf{k}_I, \mathbf{k}_F$ эффективно дают вклад в сигнал детектора. Матрицы $a_{\alpha\beta}^M$ и $a_{\alpha\beta}^A$ определяются коллимациями и мозаичностями кристаллов прибора. Алгоритм их вычисления описан в [3].

Мозаичность образца, а также наличие распределений (3), (4) способствуют появлению двукратных процессов, так как условия брэгговского отражения для векторов $\mathbf{k}_I, \mathbf{k}_F$ (2) могут выполняться лишь приближенно. Критерии для оценки точности выполнения (2) предложены в [2].

В случае мозаичности образца предполагается [3], что кристалл можно разбить на объемы, столь малые, что нейтрон успевает испытать в каждом из них лишь однократное — упругое или неупругое рассеяние. Вследствие разориентации кристаллитов рассеяние на разных объемах полагаем некогерентным.

Для описания процессов рассеяния на элементарном объеме будем использовать удельные (на единицу объема) дифференциальные сечения упругого когерентного и однофононного когерентного рассеяния, рассчитанные в первом борновском приближении с учетом усреднения по слагающим объемам кристаллитам. Для этих сечений введем форму записи с явно обозначенными волновыми векторами падающего и рассеянного нейтронов

$$\Sigma^0(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \frac{1}{v_{\alpha\beta}} \frac{d\sigma^0}{d\mathbf{k}_f}, \quad \Sigma^1(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f) = \frac{1}{v_{\alpha\beta}} \frac{d\sigma^1}{d\mathbf{k}_f}. \quad (6)$$

Здесь $v_{\alpha\beta}$ — элементарный объем, а индексы «0» и «1» относятся к брэгговскому и однофононному процессам соответственно.

Как показано в [3], форма линии пика, обусловленного рассеянием на определенном фоне с учетом двукратных вкладов, дается выражением

$$I(Q_0\omega_0) = I^{(1)}(Q_0\omega_0) - I^{(2)}(Q_0\omega_0) + I^{(3)}(Q_0\omega_0), \quad (7)$$

где

$$I^{(1)}(Q_0\omega_0) = KV_s \int d\mathbf{k}_i d\mathbf{k}_f B_M(\mathbf{k}_i) B_A(\mathbf{k}_f) \Sigma^1(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f), \quad (8)$$

$$I^{(2)}(Q_0\omega_0) = KV_s \int d\mathbf{k}_i d\mathbf{k}_f D_M^{(2)}(\mathbf{k}_i) B_A(\mathbf{k}_f) \Sigma^1(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f), \quad (9)$$

$$I^{(3)}(Q_0\omega_0) = KV_s \int p\mathbf{k}'_i d\mathbf{k}_f D_M^{(3)}(\mathbf{k}'_i) B_A(\mathbf{k}_f) \Sigma^1(\mathbf{k}'_i, \mathbf{k}_f), \quad (10)$$

$$D_M^{(2)}(\mathbf{k}_i) = \mathcal{L}_{\mathbf{k}_f} B_M(\mathbf{k}_i) \int d\mathbf{k}' \Sigma^0(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}'_i), \quad (11)$$

$$D_M^{(3)}(k'_i) = l_{k'_i} \int dk_i B_M(k_i) \Sigma^0(k, k'_i), \quad (12)$$

$l_{k_i}, l_{k'_i}$ — средние линейные размеры образца в направлениях, задаваемых векторами k_i, k'_i .

На основании формул (8)—(12) можно получить эффективное представление для различных вкладов (7)

$$I^{(N)}(Q_0\omega_0) = KV_s \int dQ d\omega R_{Q_0\omega_0}^{(N)}(Q\omega) \Sigma^1(Q\omega), \quad (13)$$

$$R_{Q_0\omega_0}^{(1)}(Q\omega) = \int dk_i dk_f \delta(Q - [k_i - k_f]) \delta(\omega - \frac{\hbar}{2m} [k_i^2 - k_f^2]) B_M(k_i) B_A(k_f), \quad (14)$$

$$R_{Q_0\omega_0}^{(3)}(Q\omega) = \int dk'_i dk'_f \delta(Q - [k'_i - k'_f]) \delta(\omega - \frac{\hbar}{2m} [k'_i{}^2 - k'_f{}^2]) D^{(3)}(k'_i) B_A(k'_f). \quad (15)$$

Отметим, что выражение для $I^{(2)}$ отличается от выражения для $I^{(1)}$ заменой $B_M \rightarrow D_M^{(2)}$.

Полезно рассмотреть геометрическую интерпретацию формул (14)—(15). Интеграл (14) определяется перекрытием функций $B_M(k_i)$ и $B_A(k_f)$ на плоскости, задаваемой подынтегральными δ -функциями.

Интегрирование в гауссовом приближении [3] окончательно дает

$$I^{(N)}(Q_0\omega_0) \equiv I^{(N)}(W) = I_0^{(N)} \exp\left\{-\frac{1}{2} \frac{(W - W_N)^2}{\Gamma_N^2}\right\}, \quad (16)$$

где $I_0^{(N)}, W_N, \Gamma_N$ — сложные функции параметров прибора и образца.

Рассмотрим влияние характеристик прибора на параметры двукратных пиков. В табл. 1 приведены интенсивности (произв. ед.), аппаратные ши-

Т а б л и ц а 1

b_e , процесс	$\beta_0 = 0.025 \quad \beta_1 = 0.0308$ $\beta_2 = 0.0327 \quad \beta_3 = 0.073$	$\beta_0 = \beta_1 = 0.005$ $\beta_2 = 0.0327 \quad \beta_3 = 0.073$	$\beta_0 = 0.025 \quad \beta_1 = 0.0308$ $\beta_2 = \beta_3 = 0.005$
Однокр. процесс	$I_0 = 4.093$ $\Gamma_A = 0.748$	$I_0 = 1.017$ $\Gamma_A = 0.748$	$I_0 = 0.6508$ $\Gamma_A = 0.748$
L , неупруго-упругий $b_e = b(3, 3, -1)$	$I_0 = 0.021$ $\Gamma_A = 0.637$ $W_c = -0.197$	$I_0 = 5.293 \cdot 10^{-3}$ $\Gamma_A = 0.637$ $W_c = -0.197$	$I_0 = 6.78 \cdot 10^{-3}$ $\Gamma_A = 0.416$ $W_c = -0.436$
T_1 , упруго-неупругий $b_e = b(-1, 1, 3)$	$I_0 = 0.97$ $\Gamma_A = 0.545$ $W_c = 0.208$	$I_0 = 0.328$ $\Gamma_A = 0.428$ $W_c = 0.242$	$I_0 = 0.152$ $\Gamma_A = 0.545$ $W_c = 0.208$
T_1 , упруго-неупругий $b_e = b(0, 2, 4)$	$I_0 = 0.669$ $\Gamma_A = 0.583$ $W_c = -0.306$	$I_0 = 0.197$ $\Gamma_A = 0.514$ $W_c = -0.34$	$I_0 = 0.105$ $\Gamma_A = 0.583$ $W_c = -0.306$
T_1 , неупруго-упругий $b_e = b(1, -1, -3)$	$I_0 = 0.799$ $\Gamma_A = 0.938$ $W_c = 0.108$	$I_0 = 0.198$ $\Gamma_A = 0.938$ $W_c = 0.108$	$I_0 = 0.195$ $\Gamma_A = 0.862$ $W_c = 0.254$

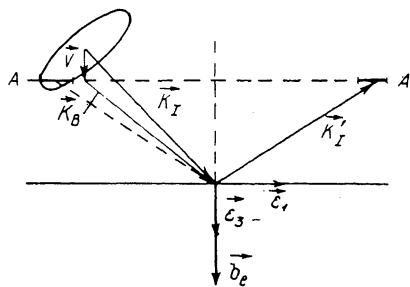
рины ($1 \cdot 10^{12}$ рад/с) и частотные сдвиги однократного и двукратных пиков, рассчитанных для фонона $aq/2\pi = 0.5$ в направлении (110), измеряемого из точки (220) в свинце. Эта позиция является оптимальной для измерения характеристик фононов продольной поляризации L (110). Образец представляет собой сферу радиусом 1 см, ориентированную таким образом, что плоскостью рассеяния является плоскость (110) обратной решетки. Мозаичность кристалла $20'$. Фононы поперечной поляризации T_1 (110) запрещены для наблюдения при однократном рассеянии поляризационным множителем. Тем не менее, как видно из табл. 1, вклады от поперечного фонона T_1 через двукратные процессы

существуют, они обусловлены векторами обратной решетки $b_e = b(113)$, $b_e = b(024)$, $b_e = b(11\bar{3})$. Кроме того, существует двукратный неупруго-упругий процесс, характеризуемый вектором $b_e = b(31\bar{1})$, который дает вклад в форму линии измеряемого пика L .

Обратим внимание на поведение аппаратурной ширины Γ_A нейтронных резонансов при варьировании вертикальных коллимаций монохроматора β_0 и β_1 и анализатора β_2 и β_3 . Эти параметры были выбраны потому, что они не влияют на ширину однократных резонансов, так как не меняют величины проекций эллипсоидов (5) на плоскость рассеяния $k_I k_F$. Именно величина этих проекций определяет энергетическое разрешение прибора.

При двукратном рассеянии процесс может выходить за пределы плоскости $k_I k_F$, причем именно за счет упругой стадии, определяемой векторами b_e . В этом случае изменение вертикальных коллимаций приводит к изменению проекций эллипсоидов (5) на плоскость $k_I k_F$ и, следовательно, влияет на ширину двукратного пика. Наличие такой зависимости (табл. 1) позволяет предложить метод экспериментального обнаружения наличия двукратных вкладов в форму линии наблюдаемого нейтронного резонанса.

Достаточно, например, уменьшить вертикальные коллимации монохроматора и анализатора одновременно. Если при этом ширина исследуемого резонанса также уменьшилась, то, значит, двукратные процессы имеют место и искажают его форму. Этот метод, однако, не универсален. Если вектор обратной решетки b_e лежит в плоскости рассеяния k_I, k_F , изменение вертикальных коллимаций не влияет на ширину двукратных резонансов и следует обратиться



к теоретическому анализу двукратных вкладов [3]. Чем больше угол между векторами b_e и плоскостью рассеяния, тем сильнее меняется ширина резонанса при одинаковых вариациях вертикальных коллимаций.

Векторы k_I и k'_I — центры распределения падающего и упруго рассеянного потоков.

Иногда можно ответить на вопрос, какой тип двукратного процесса имеет место. Как видно из табл. 1, изменение вертикальных коллимаций монохроматора влияет только на ширину упруго-неупругих процессов, тогда как изменение соответствующих параметров анализатора влияет на ширину неупруго-упругих процессов. Этот факт будет совершенно понятен, если учесть, что именно упругая стадия двукратных процессов приводит к появлению зависимости ширины резонанса от вертикальных коллимаций прибора. Разумеется, такой анализ может быть проведен, если в нейтронный резонанс дают вклад двукратные процессы какого-то одного типа, неупруго-упругий процесс для фона $aq/2\pi = 0.5$ поляризации L в табл. 1, например.

Обратимся теперь к частотным сдвигам двукратных пиков W_c , представленным в табл. 1. Природа этих сдвигов была выяснена в [3]. Из рисунка видно, что если волновой вектор падающего на образец нейтрона k_I не находится в брэгговской позиции относительно отражающих плоскостей AA' , модуль промежуточного вектора $|k'_I| \neq |k_I|$. Таким образом, упругая стадия процесса двукратного рассеяния нейтронов приводит к частотному сдвигу рефлекса. Порядок вычисления величин этих сдвигов описан в [3]. Ясно, что они определяются параметрами прибора, задающими геометрию эллипсоидов (5) и взаимным положением векторов k_I, b_e . Такой же вывод справедлив и для неупруго-упругих процессов. Увеличение сдвигов W_c упруго-неупругих резонансов при уменьшении коллимаций монохроматора и неупруго-упругих при уменьшении коллимаций анализатора находит объяснение в поведении проекций эллипсоидов (5), (6) на плоскость $e_1 e_3$ (см. рисунок). С уменьшением коллимаций эти проекции становятся более вытянутыми, что приводит к росту частотных сдвигов при одновременном падении интенсивности.

Зависимость частотных сдвигов двукратных пиков от параметров прибора является на самом деле лишь проявлением более общего свойства двукратного рассеяния нейтрона — зависимости частотных сдвигов от ширины нейтронного резонанса. Выражение, полученное в [3] для формы линии двукратного пика, имеет вид

$$I(W) = I^0 \exp \left\{ -\frac{1}{2} [AV^2 + G(W - ZV)^2] \right\} \quad (17)$$

где V — отклонение волнового вектора k_T от брэгговского положения (см. рисунок), $W = \omega_0 - \omega^0$ — параметр сканирования — отклонение частоты настройки прибора ω_0 от точки прокола дисперсионной поверхности ω^0 . Коэффициенты A, Z, G определяются параметрами прибора и геометрией рассеяния.

Из формулы (17) следует, что максимум пика двукратного процесса не соответствует моменту прокола дисперсионной поверхности. На положение максимума оказывает влияние сомножитель $\exp \{-AV^2/2\}$, характеризующий точность выполнения брэгговских условий. В процессе сканирования положение волнового вектора нейтрона k_T относительно вектора b_e меняется, что ведет к изменению параметра V . Положение максимума — результат компромисса между выполнением брэгговских условий ($V=0$) и проколом дисперсионной поверхности ($W=0$). В частности, естественная ширина фона тоже должна вносить свой вклад в величину частотного сдвига.

На спектрометре «Нейтрон-3» было проведено экспериментальное исследование ряда фононов в системе $Fe_{72}Ni_{22}Mn_6$. При этом анализировался вопрос о причинах аномального температурного поведения некоторых пиков. Предполагалось, что наблюдаемый частотный сдвиг связан с двукратными вкладами в однофононные резонансы.

Т а б л и ц а 2

b_e , процесс	$\beta_0 = 0.025 \quad \beta_1 = 0.0308$ $\beta_2 = 0.032 \quad \beta_3 = 0.073$	$\beta_0 = \beta_1 = 0.005$ $\beta_2 = 0.0327 \quad \beta_3 = 0.073$	$\beta_0 = 0.025 \quad \beta_1 = 0.0308$ $\beta_2 = \beta_3 = 0.005$
T_1 (112) Однократный	$I_0 = 3.6578$ $\Gamma_A = 0.595$	$I_0 = 0.901$ $\Gamma_A = 0.595$	$I_0 = 0.573$ $\Gamma_A = 0.595$
T_1 (112) (неупруго-упругий) $b_e = b$ (020)	$I_0 = 0.225$ $\Gamma_A = 0.691$ $W_c = 0.048$	$I_0 = 5.549 \cdot 10^{-2}$ $\Gamma_A = 0.691$ $W_c = 0.048$	$I_0 = 0.101$ $\Gamma_A = 0.688$ $W_c = 0.143$
T_2 (110) (неупруго-упругий) $b_e = b$ (020)	$I_0 = 0.675$ $\Gamma_A = 0.691$ $W_c = 0.048$	$I_0 = 0.1664$ $\Gamma_A = 0.691$ $W_c = 0.048$	$I_0 = 3.394 \cdot 10^{-3}$ $\Gamma_A = 0.688$ $W_c = 0.143$

В табл. 2 приведены параметры однократного и двукратного нейтронных резонансов, рассчитанных для фона $aq/2\pi = 0.175$ поляризации T_1 (112) в направлении (111), измеряемого из точки (002) в $Fe_{72}Ni_{22}Mn_6$ при $T = 300$ К. Плоскость рассеяния — (110). Ветвь поляризации T_2 (110) совпадает по энергии с ветвью T_1 и запрещена для наблюдения поляризационным множителем. Из этой таблицы видно, что существует двукратный вклад в форму линии наблюдаемого пика с вектором обратной решетки $b_e = b$ (020). Кроме того, наблюдается вклад от фона поляризации T_2 с тем же вектором обратной решетки b_e . Однако интенсивности этих вкладов по сравнению с интенсивностями двукратных пиков в свинце (табл. 1) невелики. Малы и их частотные сдвиги.

Таким образом, система $Fe_{72}Ni_{22}Mn_6$ в отличие от Рb демонстрирует пример малых двукратных вкладов в форму линии рассматриваемых однофононных резонансов. Вообще же опыт вычисления двукратных вкладов в зависимости от параметров спектрометра показывает, что их относительная роль существенным образом меняется в зависимости от постановки задачи. Поэтому при изучении тонких фононных эффектов численные оценки, подобные приведенным в настоящей работе, а также в [4], являются необходимыми.

Экспериментально наличие двукратных вкладов может быть выявлено с помощью вариации вертикальных коллимаций, как это предложено в работе.

Литература

- [1] Brockhouse B. N., Arase T., Caglioti G. et al. Phys. Rev. 1962, v. 128, N 3, p. 1099—1111.
- [2] Иванов А. С., Митрофанов Н. Л., Румянцев А. Ю. и др. Препринт ИАЭ 3913/9. М., 1984.
- [3] Бобровский В. И., Ждакин И. Л. М. Деп. ВИНТИ, 1985, № 3162—3185. 90 с.
- [4] Бушцев В. А., Кузьмин Р. Н., Куюмчан В. А. Письма в ЖТФ, 1982, т. 8, № 6, с. 343—347.

Институт физики металлов АН СССР
Уральский научный центр
Свердловск

Поступило в Редакцию
13 января 1987 г.