

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

97-64

P14-97-64

С.А.Данилкин¹, Е.Л.Ядровский

ИЗМЕРЕНИЕ ДИСПЕРСИОННЫХ КРИВЫХ ФОНОНОВ
В НИОБИИ НА ВРЕМЯПРОЛЕТНОМ
СПЕКТРОМЕТРЕ НЕЙТРОНОВ ДИН-2ПИ
НА РЕАКТОРЕ ИБР-2

¹ГНЦ РФ Физико-энергетический институт, Обнинск

1997

Введение

Метод времени пролета применялся для измерений фононов на импульсном реакторе ИБР-30 еще в конце 60-х годов. Измерения проводились на спектрометре обратной геометрии, т.е. с фиксированной энергией рассеянных нейтронов [1]. Была показана принципиальная возможность использования импульсных реакторов для измерений фононных и магنونных возбуждений в кристаллах. Также были предложены методики, позволяющие проводить измерения фононов с волновыми векторами в заданных симметричных направлениях обратной решетки [2].

Подобные исследования проводились и на многодетекторном спектрометре прямой геометрии ДИН-1М [3]. Измерения, выполненные А.А.Шкатулой и А.К.Гордюшиным, показали, что как и в случае спектрометра обратной геометрии, на спектрометре ДИН-1М можно измерять фононы с заданным направлением волнового вектора при соответствующих выбранному углу рассеяния волновом векторе падающих нейтронов и ориентации кристалла. При этом на других детекторах одновременно наблюдаются фононы с произвольными волновыми векторами в плоскости рассеяния.

В дальнейшем техника времени пролета практически перестала использоваться для исследования дисперсионных зависимостей элементарных возбуждений в кристаллах. Это было связано как с низкой интенсивностью импульсных источников нейтронов для подобного рода экспериментов, так и с методическими особенностями метода. Поэтому измерения на реакторе ИБР-30 фактически ограничились наблюдением отдельных фононов - точность экспериментальных данных была недостаточной для измерения дисперсионных кривых.

В последнее время, с пуском мощных импульсных источников нейтронов, отношение к исследованиям элементарных возбуждений в монокристаллах методом времени пролета пересматривается. Специальные спектрометры для

исследования монокристаллов созданы в Англии (PRISMA в RAL ISIS) и Японии (MAX в KENS).

В связи с этим представляет интерес проведение измерений дисперсии фононов в монокристаллах на многодетекторном времяпролетном спектрометре нейтронов ДИН-2ПИ на реакторе ИБР-2.

В данной работе анализируются возможности измерения дисперсионных зависимостей фононов на спектрометре прямой геометрии и приводятся результаты для ниобия.

1. Выбор условий эксперимента

1.1. Измерения неупругого рассеяния нейтронов проводились на спектрометре по времени пролета ДИН-2ПИ на импульсном реакторе ИБР-2 [4]. Спектрометр ДИН-2ПИ является спектрометром прямой геометрии с монохроматизацией падающих на образец нейтронов на первой пролетной базе и анализом энергии рассеянных нейтронов по времени пролета второй базы. Начальная энергия нейтронов может варьироваться в диапазоне 2 – 50 мэВ, а наличие большого числа фиксированных детекторов (до 60) обеспечивает широкий выбор условий эксперимента. Измерительный модуль позволяет регистрировать рассеянные нейтроны для 32 независимых углов одновременно.

В данных измерениях использовались детекторы спектрометра в диапазоне углов 27-135°. Детекторы спектрометра расположены по углу рассеяния неравномерно: по пять детекторов в нейтроноводе через $\approx 5^\circ$ (таблица). В соседних нейтроноводах между крайними детекторами имеется промежуток в $\approx 20^\circ$, что в ряде случаев ограничивает выбор условий измерений. Детектор, в свою очередь, состоит из 3 секций с угловым расстоянием в $1,4^\circ$ между ними, т.е. в каждом нейтроноводе имеется по 15 независимых секций, расположенных практически с равномерным шагом по углу рассеяния.

1.2. При измерениях вначале проводилась ориентировка кристалла, определялся параметр решетки, и оценивалась мозаичность образца. Для этого снимался ротор-монокроматор спектрометра и измерялись дифракционные спектры.

Мозаичность монокристалла ниобия составляла около $\Delta\Theta=30'$, что примерно соответствует угловой расходимости пучка рассеянных нейтронов для одной секции детекторов, поэтому дополнительная коллимация пучка не проводилась.

1.3. При измерениях дисперсионных кривых на спектрометре по времени пролета прямой геометрии условия измерений обычно выбираются так, чтобы волновой вектор рассеянных нейтронов k совпадал с одним из направлений обратной решетки, не проходящим через узел (000) (рис.1). Однако для конкретного спектрометра из множества таких направлений только для нескольких из них условия измерений будут подходящими по интенсивности потока нейтронов и разрешению. Для выбранного направления $[hkl]$ величина и направление волнового вектора падающих нейтронов k_0 определяются геометрией обратной решетки и выбранным углом рассеяния спектрометра Θ .

Для направления $[111]$, проходящего через узел (110) в плоскости (110) обратной решетки, значения k_0 и начальной энергии нейтронов E_0 приведены в таблице для центральных секций детекторов. Из данных видно, что начальные энергии нейтронов находятся в рабочем диапазоне энергий спектрометра ДИН-2ПИ. Более того, также возможны измерения в следующей зоне Бриллюэна с волновыми векторами $k_0^* \approx 2k_0$, когда вектор k совпадает с направлением $[111]$, проходящим через узел (220) (показано пунктиром на рис.1). Следует отметить, что для направлений $[111]$ и $[11-1]$ обратной решетки при одном и том же угле рассеяния и величине вектора k_0 , но для отличающихся на угол 180° ориентаций кристалла, измерения дают различные фононы. Таким образом, для кристалла ниобия при использовании описанной методики на спектрометре ДИН-2ПИ общее число

измерений, в которых должны наблюдаться различные фононы в направлении [111], достигает 180. Для направлений [100] и [110] число различных вариантов уменьшается минимум в 2 раза из-за того, что угол α составляет 90°, т.е. при измерениях вдоль, например, [100] и [010] будут наблюдаться одни и те же фононы. Кроме того, в последнем случае измерения при $k_0^* = 2k_0$ в ряде случаев будут ограничиваться интенсивностью нейтронов и разрешением спектрометра.

1.4. Для оптимального выбора условий измерений необходимо иметь некоторую предварительную информацию о дисперсионных кривых исследуемого вещества. Тогда для выбранного направления [hkl] в обратной решетке и заданных геометрией спектрометра углов рассеяния можно построить зависимости $\varepsilon(Q_{hkl}) = \hbar^2((Q_{hkl} + k_f)^2 - k_0^2)/2m$ и $\hbar\omega_s(Q_{hkl}) = \pm \hbar\omega_s((q + 2\pi\tau)_{hkl})$, где Q_{hkl} - волновой вектор вдоль направления [hkl], а величина k_f определяется выбором начала координат. Пересечения этих кривых будут соответствовать одновременному выполнению условий сохранения энергии и импульса при рассеянии, т.е. показывать фононы, наблюдаемые в данных экспериментальных условиях.

Такие зависимости можно построить для всех детекторов и поместить на один график, который будет показывать все фононы, которые можно измерить для заданного направления [hkl]. На рис.2 приведены графики зависимостей $\varepsilon(Q_{hkl}) = \hbar^2((Q_{hkl} + k_f)^2 - k_0^2)/2m$ и $\hbar\omega_s(Q_{hkl}) = \pm \hbar\omega_s((q + 2\pi\tau)_{hkl})$ для кристалла ниобия для направления [111], проходящего через узел (110) (одному измерению соответствует одна парабола на графике). Дисперсионные кривые $\hbar\omega_s(Q)$ рассчитывались в модели обобщенных сил взаимодействия с учетом восьми координационных сфер. Использовались константы из работы [5].

Линии зависимости $\varepsilon(Q)$ образуют три группы (полосы), каждую из которых они заполняют практически равномерно. Разрывы между полосами обусловлены конструкцией спектрометра. Левая полоса соответствует углам $\Theta = 27-49^\circ$, средняя $\Theta = 70-92^\circ$, и правая $\Theta = 113-135^\circ$. Как уже отмечалось,

условия измерений для выбранного направления [111] оптимальны по интенсивности и разрешению спектрометра для всех углов рассеяния. Как видно из рис.2, в различных измерениях число пересечений дисперсионных кривых и парабол $\varepsilon(Q)$ (число наблюдаемых фононов) меняется от двух до шести. Минимальный шаг по Q при измерении дисперсионных кривых определяется кривыми $\varepsilon(Q)$ для соседних секций (кривые для всех секций детекторов показаны на рис.2 пунктиром только для крайних детекторов в нейтроноводах, для остальных приведены только для центральных секций). Таким образом, при измерениях вдоль рассматриваемого направления может быть получена детальная информация о продольной (L) и поперечной (T) ветвях дисперсионных кривых практически для всех волновых векторов фононов, кроме области вблизи $q/q_m = 0,5$ (вблизи точки P). Тем не менее большой выбор различных вариантов измерений для направления [111] позволяет предполагать, что дисперсионные кривые ниобия могут быть детально измерены во всей области волновых векторов фононов. Для направлений [100] и [110], однако, возможны участки дисперсионных кривых, которые не могут быть подробно измерены при использовании данного метода. В этом случае можно применить другие методы измерений, в которых условия эксперимента, скорее всего, будут подбираться для измерения только одного заданного фонона.

2. Экспериментальные результаты

2.1. Экспериментальный спектр рассеянных нейтронов при ориентации направления [111] кристалла на угол рассеяния $\theta = 119,07^\circ$ и начальной энергии нейтронов $E_0 = 6,54$ мэВ показан на рис.3. Волновой вектор рассеянных нейтронов при этих условиях совпадает с направлением [111], проходящим через узел (110).

В спектре присутствуют пики соответствующие однофононному рассеянию с рождением и уничтожением фонона. Наблюдаемые фононы показаны на рис.2 точками и находятся на кривой $\varepsilon(Q_{hkl}) = \hbar^2((Q_{hkl} + k_f)^2 -$

$k_0^2/2m$ для угла $119,07^\circ$. Число наблюдаемых фононов и их энергии согласуются с приведенными на рис.2 результатами предварительных расчетов. Некоторые сдвиги в положениях фононов по сравнению с расчетной кривой $\hbar\omega_s(Q_{hkl}) = \hbar\omega_s((q+2\pi\tau)_{hkl})$ связаны с неточностью модели. Остальные точки на рис.2. соответствуют фононам, наблюдаемым при настройке на другие детекторы ($\Theta=71,3^\circ$ и $123,9^\circ$).

2.2. Представляет интерес сравнение полученных результатов с имеющимися экспериментальными данными по ниобию, измеренными на трехкристальном спектрометре на реакторе постоянной мощности [5,6]. Как видно из рис.4, результаты, полученные на спектрометре ДИН-2ПИ, хорошо согласуются с этими данными. Оцененная ошибка частот фононов, как правило, не превышает размеров точки на графике. Следует отметить, что расширен диапазон экспериментальных данных: определены частоты низкочастотных фононов с волновыми векторами $q < 0,15$. В целом результаты измерений на спектрометре ДИН-2ПИ демонстрируют хорошие возможности для измерений дисперсионных зависимостей фононов.

2.3. Поскольку спектрометр ДИН-2ПИ многодетекторная установка, то одновременно со спектром на детекторе, для которого направление вектора k совпадает с $[110]$, измеряются спектры для других углов рассеяния. На рис.5. приведены спектры рассеянных нейтронов, наблюдаемые на различных углах рассеяния, когда вектор k совпадает с направлением $[110]$ при $\Theta=119,07^\circ$. Спектры сильно изменяются с углом рассеяния, особенно фоннные пики при малых передачах энергии. Диаграммы рассеяния для этих спектров показаны на рис.6. Из рисунка видно, что некоторые фононы могут быть добавлены к имеющимся данным по дисперсионным зависимостям в симметричных направлениях, но, как правило, волновые векторы фононов не лежат в симметричных направлениях. В принципе, все измеряемые фононы могут быть использованы для анализа динамических характеристик. Однако уже при анализе простого случая низкочастотных

фононов в зоне Бриллюэна с центром в узле (110) (рис.6), требуются расчеты интенсивности однофононного рассеяния для определения индекса поляризации фононов. На сложность анализа фононов в несимметричных направлениях, особенно в кристаллах со сложной структурой, обращалось внимание в работе [7]. Тем не менее справедлив вывод работы [7] о том, что для простых структур использование всей получаемой в эксперименте информации представляется возможным. Такие данные позволяют проверять точность динамической модели более полным образом. Однако в настоящее время анализ фононов в несимметричных направлениях, полученных на спектрометрах по времени пролета, не проводится.

Выводы

1. Для случая ниобия проведен анализ экспериментальных возможностей спектрометра ДИН-2ПИ для измерений дисперсионных зависимостей фононов. Показано, что дисперсионные зависимости фононов могут быть детально измерены для выбранного направления волнового вектора.
2. Результаты измерений дисперсионных кривых в направлении $[111]$ в ниобии, полученные на спектрометре ДИН-2ПИ, хорошо согласуются с известными экспериментальными данными, измеренными на трехкристальном спектрометре.
3. Одновременно с информацией о фононах в заранее выбранных направлениях в измерениях получен большой объем данных по фононам в несимметричных направлениях. Такие данные дают возможность проверить точность динамической модели более полным образом, однако их анализ требует развития специальных методик.

Авторы выражают благодарность Мироновой Г.М. за стимулирующие обсуждения и Морозову В.М. за помощь при проведении измерений на спектрометре ДИН-2ПИ.

Таблица

Волновые векторы и начальные энергии нейтронов в зависимости от угла рассеяния для направления $[111]$, проходящего через узел (110) (рис.1) (данные приведены только для центральных секций детекторов)

$N_{\text{нейтр.}}/N_{\text{дет}}$	Θ , град.	k_0 , Å^{-1}	E_0 , мэВ
1/1	133,693	2,150	9,579
1/2	128,817	1,995	8,250
1/3	123,937	1,873	7,276
1/4	119,071	1,778	6,556
1/5	114,213	1,704	6,021
2/1	90,674	1,554	5,009
2/2	85,805	1,559	5,035
2/3	80,944	1,574	5,135
2/4	76,092	1,601	5,315
2/5	71,248	1,641	5,585
3/1	47,633	2,104	9,174
3/2	42,775	2,289	10,859
3/3	37,933	2,528	13,2529
3/4	33,081	2,848	16,810
3/5	28,225	3,287	22,391

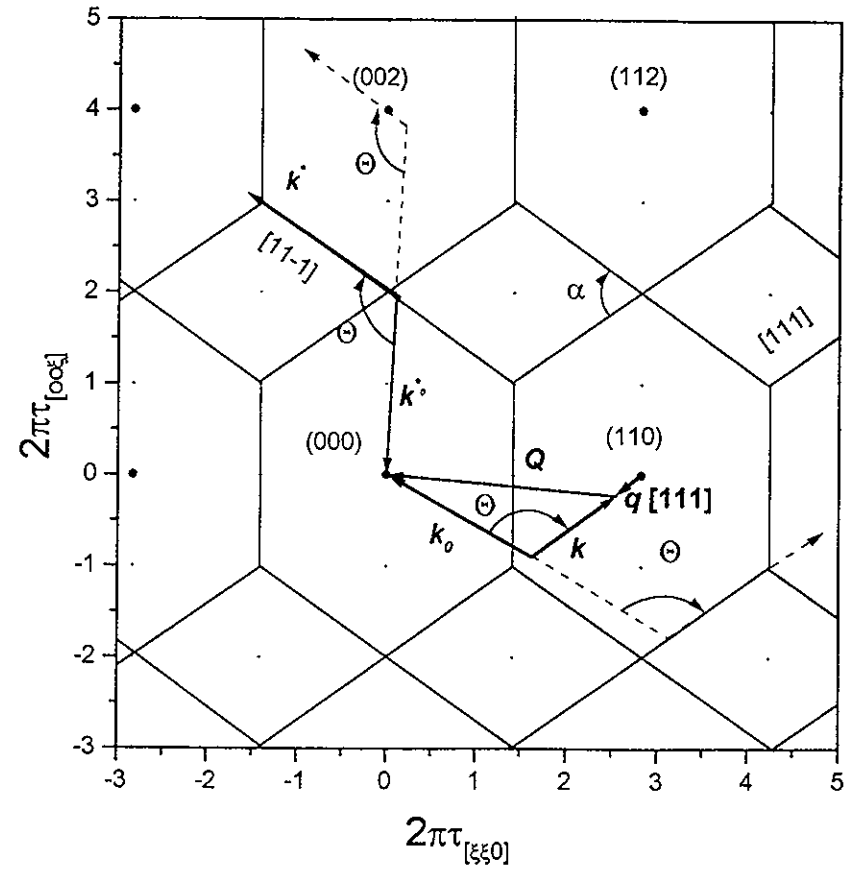


Рис.1 Векторная диаграмма рассеяния в плоскости (110) обратной решетки ОЦК кристалла.

k_0, k - волновые векторы падающих и рассеянных нейтронов
 Q - вектор передачи импульса
 q - волновой вектор фонона
 Θ - угол рассеяния
 $2\pi t$ в ед. π/a

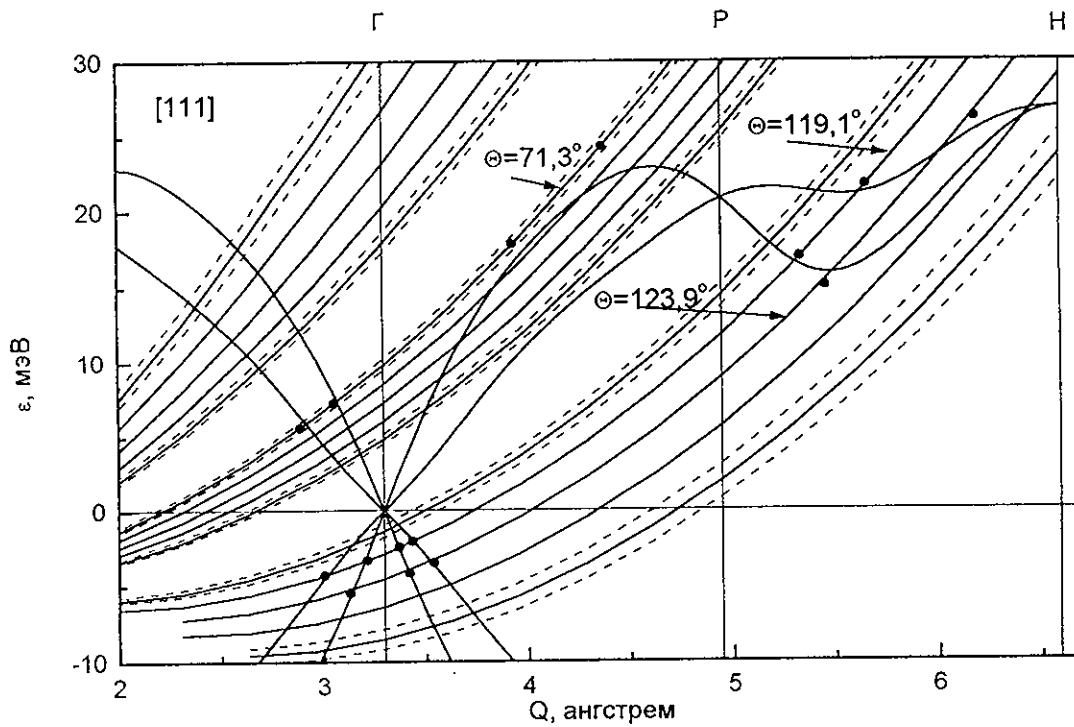


Рис.2 Функции $\varepsilon(Q_{111}) = \hbar^2((Q_{111} + k_t)^2 - k_0^2)/2m$ для центральных секций детекторов спектрометра ДИН-2ПИ и дисперсионные кривые фононов в Nb $\hbar\omega_s(Q_{111}) = \pm \hbar\omega_s(\mathbf{q} + 2\pi\tau)_{111}$ для направления [111]. Точками показаны наблюдаемые в проведенных измерениях фононы. Пунктирные линии соответствуют параболам $\varepsilon(Q)$ для боковых секций крайних детекторов в нейтроноводах

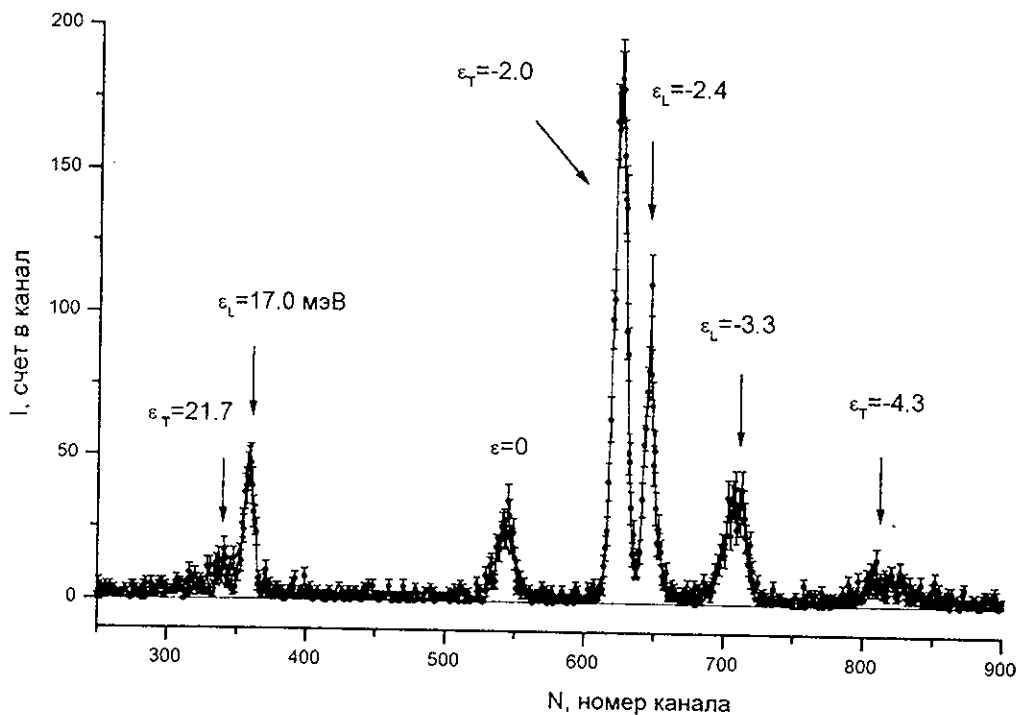


Рис.3 Спектр рассеянных нейтронов кристаллом Nb при ориентации направления [111] на угол рассеяния $\Theta = 119,07^\circ$. Начальная энергия нейтронов $E_0 = 6,5$ мэВ. Стрелками показаны наблюдаемые фононные пики ($\varepsilon > 0$ соответствует уничтожению фонона при рассеянии). Индексы L и T обозначают продольную или поперечную поляризацию фононов

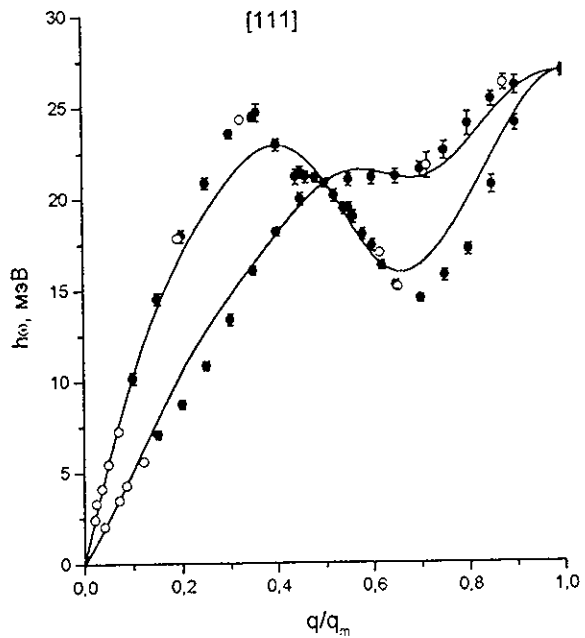


Рис.4 Дисперсионные кривые для ниобия

- - измерения на трехкристальном спектрометре [6,7]
- - измерения на спектрометре ДИН-2ПИ

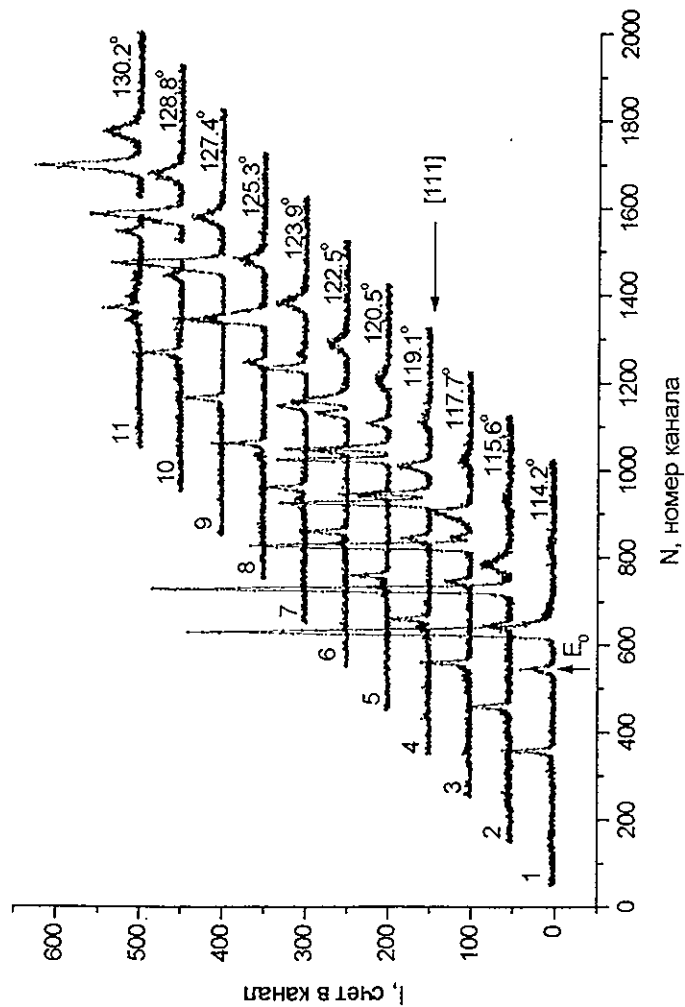


Рис.5 Спектры неупругого рассеяния нейтронов на монокристалле ниобия при $E_0 = 6,5$ мэВ для различных углов рассеяния. Пики при $\Theta = 119,1^\circ$ соответствуют фононам в направлении [111]

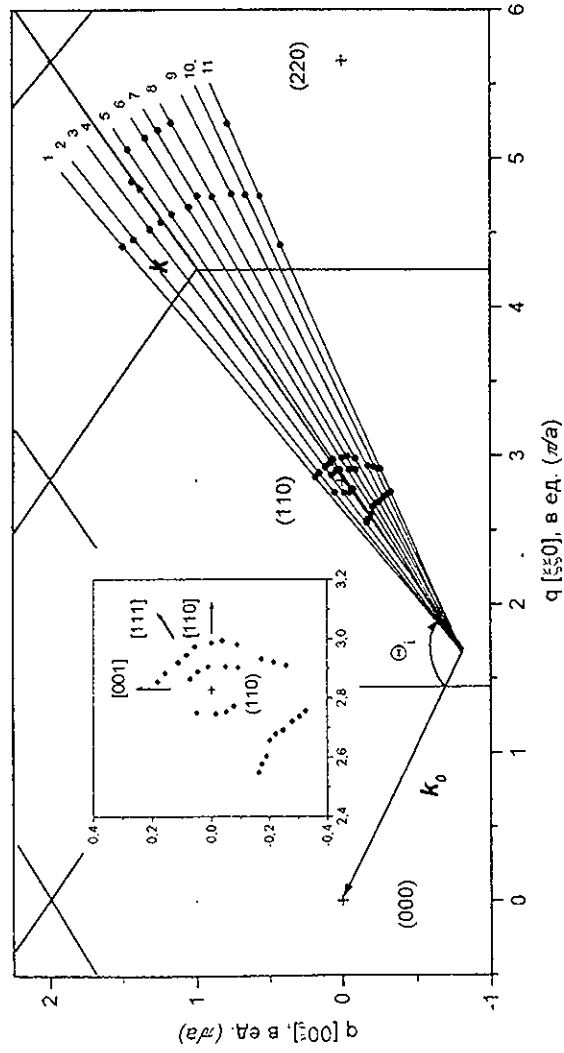


Рис.6 Диаграммы рассеяния для спектров 1-11, показанных на рис.5. Вектор k совпадает с направлением $[111]$ для $\Theta_4 = 119.1^\circ$. Точки соответствуют наблюдаемым фоновым пикам. На вставке показаны фононы вблизи узла (110) обратной решетки

Литература

1. Э.Малишевски, Т.А.Мачехина и др. Препринт ОИЯИ Р14-4270, Дубна, 1969.
2. S.Krasnicki, A.Wanic et al Preprint JINR E14-5987, Dubna, 1971.
3. В.Г.Лифоров, А.Г.Новиков и др. Препринт ФЭИ-129, Обнинск, 1968.
4. User Guide, Neutron experimental facilities at JINR, Frank Laboratory of Neutron Physics, Joint Institute for Nuclear Research, Dubna, 1992, p.24.
5. Y.Nakagawa, A.D.B.Woods Phys.Rev.Lett., 1963, v.11, No.6, p.271.
6. В.М.Повел, А.Д.В.Вудс, Р.Мартел Neutr. Inelast. Scatt., 1972, Proc. of Symp. on Neutr. Inel.Scatt., IAEA, Grenoble, France, 6-10 March 1972, IAEA, Vienna, 1972, p.43-51.
7. B.Dorner J. of Neutron Research, 1994, vol.2, No.3, p.115.

Рукопись поступила в издательский отдел
27 февраля 1997 года.