

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА



          
A-406

12/v-75

P3 - 8458

1712/2-75

Г.Г.Акопян, В.П.Алфименков, Л.Ласонь,  
О.Н.Овчинников, Э.И.Шарапов

ИЗМЕРЕНИЕ

СПИНОВЫХ АМПЛИТУД РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ  
ЯДРАМИ  $^{159}\text{Gd}$  МЕТОДОМ ДИФРАКЦИИ  
НА АНТИФЕРРОМАГНЕТИКАХ  
ПРИ СВЕРХНИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

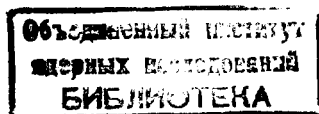
**1975**

РЗ - 8458

Г.Г.Акопян, В.П.Алфименков, Л.Ласонь,  
О.Н.Овчинников, Э.И.Шарапов

ИЗМЕРЕНИЕ  
СПИНОВЫХ АМПЛИТУД РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ  
ЯДРАМИ  $^{159}\text{Гь}$  МЕТОДОМ ДИФРАКЦИИ  
НА АНТИФЕРРОМАГНЕТИКАХ  
ПРИ СВЕРХНИЗКИХ ТЕМПЕРАТУРАХ

*Направлено в ЖЭТФ*



## Введение

Изучение спиновой зависимости взаимодействия тепловых нейтронов с ядрами дает информацию о природе и характере ядерных сил в случае легких ядер и данные о свойствах так называемых отрицательных уровней /с энергией возбуждения ниже энергии связи нейтрона/ для сложных ядер. Получаемые результаты могут быть использованы в других областях физики, например, для определения внутриатомных магнитных полей, исследования сверхтонких взаимодействий, изучения ядерного магнетизма и т.д. Наиболее ярким примером спиновой зависимости является различие синглетной и триплетной длин рассеяния нейтрона на протоне.

Для подавляющего большинства ядер, однако, данные о спиновых амплитудах рассеяния отсутствуют, поскольку для их определения недостаточно обычно проводимых измерений полных и когерентных нейтронных сечений. Прямым методом решения этой задачи является использование поляризованных нейтронных пучков и поляризованных ядерных мишеней <sup>1</sup>. Так были измерены спиновые амплитуды рассеяния для кобальта <sup>2/</sup>.

Новый метод измерения спиновых амплитуд, улучшающий чувствительность экспериментов с поляризованными нейтронами и поляризованными ядрами, предложили Барышевский и Подгорецкий <sup>3</sup>. предсказав явление прецессии спина нейтрона в поляризованной ядерной мишени. Систематическая работа по выполнению программы подобных измерений начата в Сакле <sup>4</sup>.

Менее универсальный, но более простой метод определения спиновых амплитуд рассеяния нейтронов ядрами

дан Ф.Л.Шапиро<sup>/5/</sup> и Шермером и Блюме<sup>/6/</sup>. Это метод дифракции неполяризованных нейтронов на антиферромагнитной мишени с ориентированными ядрами. Он применен для измерения спиновых амплитуд <sup>165</sup>No<sup>/7/</sup> при температурах жидкого гелия на стационарном реакторе. Экспериментальные возможности существенно расширяются с переходом к более низким температурам. Мы сообщаем об измерении спин-спиновой амплитуды <sup>159</sup>Tb методом дифракции нейтронов по времени пролета на импульсном реакторе ИБР с применением образцов, охлаждающихся до сверхнизких температур в криостате с растворением гелия-3 в гелии-4.

### Метод измерения

Рассеяние s-нейтронов ядрами со спином I происходит по двум каналам со спинами компанд-системы  $J_{\pm} = I \pm 1/2$ . В соответствующих спиновых амплитудах рассеяния  $a_{\pm}$  принято выделять два члена, первый из которых не зависит, а второй зависит от спинов:

$$a_{\pm} = A \pm B(\vec{I}_s). \quad /1/$$

В экспериментах с неполяризованными нейтронами и ядрами амплитуда A определяет когерентное, а так называемая спин-спиновая амплитуда B - спин-когерентное сечение рассеяния:

$$\sigma_{coh} = 4\pi A^2, \quad \sigma_{inc} = 4\pi I(I+1) B^2. \quad /2/$$

Величины A и B могут быть выражены согласно /1/ через амплитуды рассеяния  $a_{\pm}$  как

$$A = \frac{I+1}{2I+1} a_{+} + \frac{I}{2I+1} a_{-}, \quad B = \frac{1}{2I+1} (a_{+} - a_{-}). \quad /3/$$

Для полностью поляризованных нейтронов и ядер амплитуды когерентного рассеяния  $a^{\uparrow\uparrow}$ ,  $a^{\uparrow\downarrow}$  для параллельной и антипараллельной ориентаций поляризаций пучка нейтронов и ядерной мишени имеют вид /см., например,<sup>/6/</sup> /:

$$a_{\uparrow\uparrow} = a_{+} = A + B \cdot I, \quad a_{\uparrow\downarrow} = \frac{1}{2I+1} a_{+} + \frac{2I}{2I+1} a_{-} = A - B \cdot I. \quad /4/$$

Рассмотрим взаимодействие нейтронов с коллинеарным антиферромагнетиком. Коллинеарный антиферромагнетик /рис. 1/ состоит из двух подрешеток I и II с равными по величине, но противоположно направленными намагниченностями. Решетки смещены на величину атомного периода d, равного половине магнитного периода  $d_m$ .

Охлаждение мишени приводит к поляризации ядер в каждой подрешетке, возникающей в результате сверхтонкого взаимодействия между магнитным моментом ядра и внутриатомным магнитным полем. Величина равновесной ядерной поляризации дается известной формулой Бриллюэна:

$$P_N = B_I \left( \frac{\mu_I \hbar}{kT} \right) = \frac{2I+1}{2I} \coth \left( \frac{2I+1}{2I} \frac{\mu_I \hbar}{kT} \right) - \frac{1}{2I} \coth \left( \frac{1}{2I} \frac{\mu_I \hbar}{kT} \right). \quad /5/$$

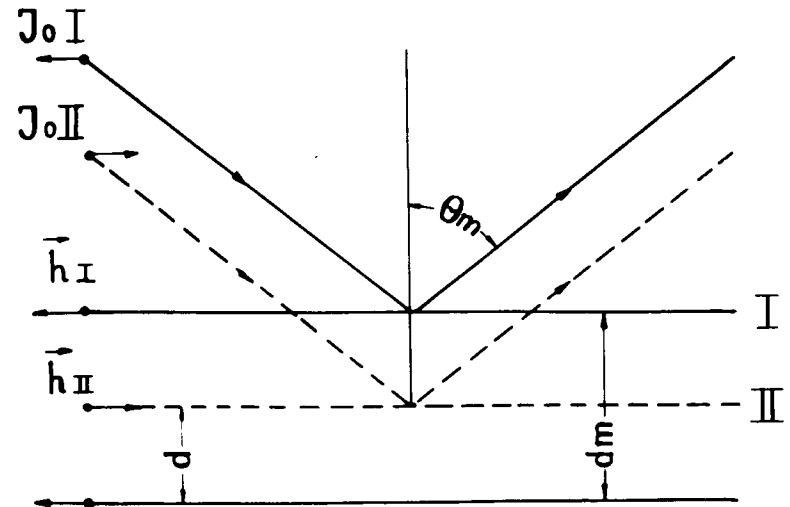


Рис. 1. Дифракция неполяризованных нейтронов на коллинеарном антиферромагнетике. Пояснения в тексте.

где  $I$  - спин ядра,  $\mu_I$  - его магнитный момент,  $H$  - "сверхтонкое" поле на ядре,  $T$  - температура образца. Вектор поляризации  $\vec{P}_N$  в подрешетке коллинеарен ее намагниченности /параллелен при  $\mu_I H > 0$  и антипараллелен при  $\mu_I H < 0$  /. Будем для простоты считать, что ядра в подрешетках поляризованы полностью.

Падающий неполяризованный пучок нейтронов удобно рассматривать состоящим из двух полностью поляризованных компонент  $J_{0I}$  и  $J_{0II}$  с интенсивностью  $I_0/2$  каждая. Компонента  $J_{0I}$ , например /рис. 1/, имеет поляризацию, параллельную поляризации ядер в подрешетке  $I$ . Помимо ядерного рассеяния, нейтроны будут испытывать и когерентное магнитное рассеяние, амплитуда которого ( $\pm a$ ) имеет знак плюс или минус в зависимости от относительной ориентации спина нейтрона и намагниченности подрешетки.

Рассмотрим отраженный пучок в направлении  $\theta_m$ , удовлетворяющем условию Брэгга-Вульфа  $2d \sin \theta_m = \lambda$  /так называемый "антиферромагнитный рефлекс"/. В отражении нейтронов каждой компоненты падающего пучка участвуют обе подрешетки. Интенсивность отражения одноатомным кристаллом одной, например 1-ой компоненты пучка, равна

$$J_I = c \cdot \frac{I_0}{2} \left( \frac{N_0}{2} \right)^2 \left[ (a^{\uparrow\uparrow} + a_\mu) - (a^{\downarrow\downarrow} - a_\mu) \right]^2.$$

Здесь учтено, что каждая подрешетка имеет вдвое меньшее число атомов ( $N_0/2$ ) и постоянные множители, такие, как кристаллографический фактор или поправка на радиационный захват нейтронов, представлены константой  $c$ . Амплитуды рассеяния от разных подрешеток сложены в противофазе, так как разность хода для волн, отраженных от двух подрешеток в направлении  $\theta_m$ , равна половине длины волны. Аналогичное выражение получается для интенсивности рассеяния II компоненты. Складывая  $J_I$  и  $J_{II}$  и используя формулы /4/, получим

$$J = c \cdot I_0 \cdot N_0^2 (a_\mu + VI)^2. \quad /6/$$

Формула свидетельствует об интерференции магнитного рассеяния нейтронов с дополнительным когерентным

ядерным рассеянием, возникающим при поляризации ядер.

Этот простой вывод сделан в соответствии с аргументами Ф.Л.Шапиро /5/. Общий случай произвольной поляризации ядер и многоатомного кристалла рассмотрен в работе /6/, по результатам которой формула /6/ может быть переписана в виде

$$J = c \cdot I_0 \cdot N_0^2 \left| \sum_i e^{i\vec{k}\vec{r}_i} (p_i \vec{q}_i + VI\vec{P}_N) \right|^2. \quad /7/$$

Здесь введено суммирование по всем атомам элементарной ячейки, амплитуда магнитного рассеяния  $a_\mu$  заменена ее общепринятым выражением  $p\vec{q}$  и введен вектор поляризации  $\vec{P}_N$  системы ядер в подрешетках. Величина  $p$  в единицах  $10^{-12}$  см равна  $p = 0,27\mu f$ , где  $\mu$  - магнитный момент иона /в магнетонах Бора/,  $f$  - магнитный формфактор атома. Вектор магнитного взаимодействия  $\vec{q}$  зависит от взаимной ориентации единичного вектора рассеяния  $\vec{k}$  и единичного вектора намагниченности  $\vec{\eta}$  и равен  $\vec{q} = \vec{\eta} - \vec{k}(\vec{k}\vec{\eta})$ .

Таким образом, измерение интенсивности антиферромагнитных отражений при наличии и отсутствии ядерной поляризации в подрешетках антиферромагнетика позволяет определить спин-спиновую амплитуду рассеяния  $V$ . При этом, в соответствии с формулами /5/ и /7/, необходимо знать магнитную структуру образца, его температуру, а также величины и знаки сверхтонкого магнитного поля и магнитного момента ядра.

Из проведенного выше рассмотрения следует также, что результатом подобного эксперимента может быть и решение обратной задачи, т.е. определение величины и знака "сверхтонкого" поля при известном значении амплитуды  $V$ .

### Эксперимент и результаты

1. Измерения выполнялись на импульсном реакторе ИБР-30 методом дифракции нейтронов по времени пролета. Угол рассеяния был фиксирован, падавшие на образец нейтроны имели непрерывный энергетический спектр, и длина волны, удовлетворяющая условию Брэгга-Вульфа,

определялась по времени пролета нейтронами заданного расстояния.

Реактор работал на средней мощности 15 кВт /импульсная мощность 60 МВт/, пролетная база составляла расстояние 34,5 м от реактора до образца и 2 м от образца до детектора. Детектором служили 5 малогабаритных гелиевых счетчиков, смонтированных в общем защитном кожухе и устанавливавшихся под заданным углом к направлению пучка.

Образцы охлаждались в низкотемпературном контейнере /размерами 200 x 60 x 5 мм/ криостата с растворением гелия-3 в гелии-4 подобно тому, как это было сделано в<sup>/8/</sup>, т.е. с помощью залитого в контейнер жидкого гелия-4, служившего для передачи тепла от образца в камеру растворения через медную стенку. Стенка имела большую поверхность, сильно развитую как в сторону контейнера, так и в сторону камеры растворения. Температура гелия в контейнере с образцом измерялась калиброванным угольным термометром и отождествлялась с температурой образца. Следует, однако, заметить, что в связи с неконтролируемым теплосопротивлением между образцом и жидким гелием-4 и возможными энерговыделениями в образце последний мог иметь более высокую температуру.

2. Для качественной проверки описанного метода определения спиновых амплитуд была измерена дифракция нейтронов на окиси кобальта. Поскольку спиновые амплитуды рассеяния нейтронов ядрами кобальта существенно различны /они равны:  $a_+ = -3,5 \Phi$ ,  $a_- = +10,3 \Phi^{1/2}$ /, ожидался большой экспериментальный эффект.

Измерения, выполненные со стограммовым мелкодисперсным порошком обычного химреактива  $\text{CoO}$  под углом  $36^\circ$  к нейтронному пучку при температурах 0,05 и 0,5 К, действительно дали наглядно видимое /20-процентное/ изменение площади магнитного отражения /111/ /см. рис. 2/. Однако для проведения количественного сравнения необходимо было, помимо данных о магнитной структуре  $\text{CoO}$ <sup>/9/</sup>, иметь значение сверхтонкого магнитного поля  $H$  на ядрах кобальта в  $\text{CoO}$  и точно знать температуру образца. Первое измерение  $H$ <sup>/10/</sup> появилось

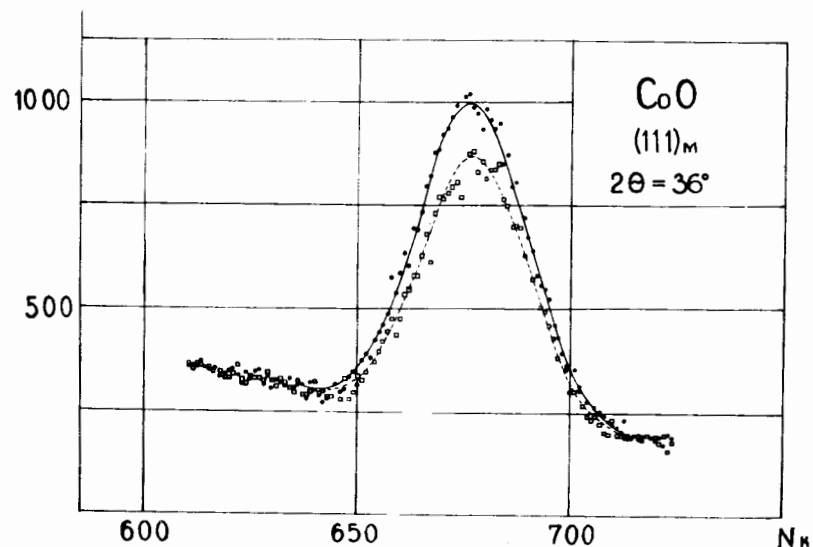


Рис. 2. Участок экспериментальной нейтронограммы  $\text{CoO}$  в области отражения /111/.  $N_k$  - номер канала временного анализатора шириной 40 мксек,  $N$  - число отсчетов детектора. Точки - измерение при температуре 0,5 К. Квадраты - измерение при температуре 0,05 К.

после завершения данного эксперимента. С использованием этого значения  $H$  ожидаемый эффект оказался втрое больше полученного. Расхождение можно объяснить упомянутым возможным отличием температуры образца от температуры термометра /0,05 К/. Кроме того, использованный образец мог иметь заметную фракцию второй кристаллографической модификации  $\text{CoO}$  /решетка с вакансиями/, о которой сообщалось в<sup>/11/</sup>. В этом случае в результате эффекта внутрикристаллических полей поле  $H$  и соответственно эффект могут быть меньше.

3. Предварительные измерения амплитуд рассеяния тербия были выполнены с образцом двуокиси тербия, выбранной ввиду простоты магнитной структуры /типа  $\text{MnO}$ , точка Нееля  $\approx 3 \text{ К}$ <sup>/12/</sup> и легкости приготовления. 120 граммов красновато-коричневого порошка  $\text{Tb}_2\text{O}_3$ , приготовленного, как в<sup>/12/</sup>, были исследованы при температурах 0,05 и 0,5 К в условиях, аналогичных условиям

опытов с  $\text{CoO}$ . Расчетные значения поляризации при этих температурах составляли 30 и 5% /использовано значение поля  $H \approx -315$  кЭ для четырехвалентного иона тербия в состоянии  $^8S_{1/2}$  /.

Относительное изменение площадей дифракционных пиков с уменьшением температуры оказалось равным  $+ /0,9 \pm 1,3\%$  для отражения /111/ и  $+ /0,3 \pm 1,2\%$  для /311/. Такой результат, даже с учетом возможной температурной неопределенности образца, указал на весьма малую спиновую амплитуду рассеяния нейтронов ядрами тербия. Для увеличения точности измерений оказалось необходимым подобрать образец, обеспечивающий 100-процентную поляризацию ядер.

4. В этой связи основная серия измерений была выполнена с интерметаллическим образцом  $\text{TbAg}$ , у которого

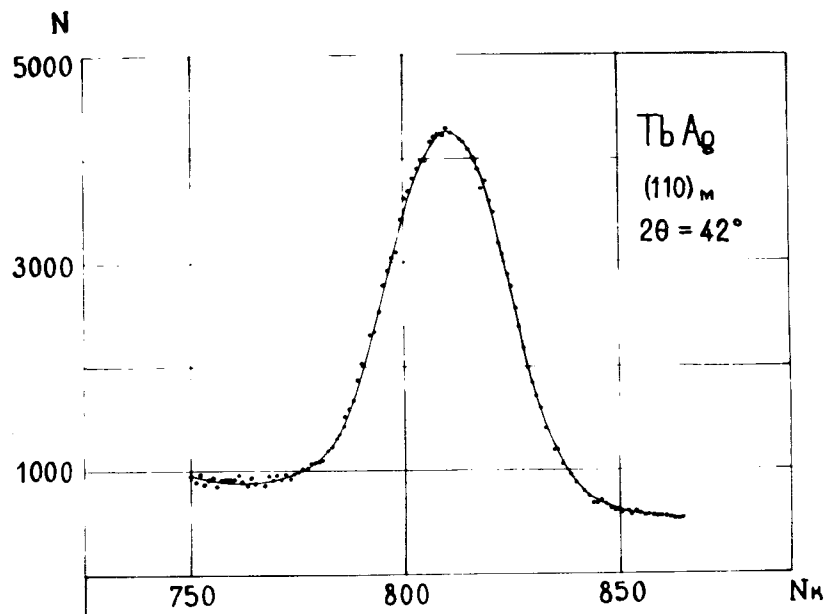


Рис. 3. Участок экспериментальной нейтронограммы  $\text{TbAg}$  в области отражения /110/ M, полученный при температуре 0,05 К.  $N_k$  - номер канала анализатора шириной 40 мксек, N - число блсчетов детектора.

поле H много больше. Образец весом 180 граммов был приготовлен из металлических тербия и серебра чистотой 99,99% методом сплавления стехиометрических количеств двух компонент в атмосфере инертного газа. После отжига он был раздроблен и засыпан в низкотемпературный контейнер. Измерения дифракции при температурах 0,05 и 1,5 К проводились под углом  $42^\circ$  в геометрии "на пропускание". Экспериментальный спектр в районе отражения /110/, полученный за 60 часов при температуре 0,05 К, показан на рис. 3. Было обнаружено малое, но выходящее за ошибку измерения уменьшение площади пика при уменьшении температуры. Полученные результаты и использованные для расчета параметры приведены в таблице.

Таблица

$a_\mu$	H	$T_1$	$T_2$	$P_{N_1}$	$P_{N_2}$	$\Delta N/N$	B
Ф	млн Э	К	К	%	%	%	Ф
23	+3,1	0,05	1,5	98	8	$-(1,2 \pm 0,5)$	$-(0,088 \pm 0,034)$

Амплитуда магнитного рассеяния /первая колонка/ рассчитана по данным о магнитной структуре /13/, полученным с помощью дифракции нейтронов. Магнитная структура - типа  $(\pi, \pi, 0)$ , с параметрами магнитной ячейки  $a = 7,24 \text{ \AA}$ ,  $c = 3,62 \text{ \AA}$  и чередующимися плоскостями /110/, в которых магнитный момент иона направлен поочередно вдоль и против направления /001/. Во второй колонке дана величина сверхтонкого магнитного поля в свободном трехвалентном ионе тербия, неоднократно измерявшаяся в других соединениях. Можно использовать это значение, т.к. магнитный момент трехвалентного иона в  $\text{TbAg}$   $/\mu_B = 8,7 \div 9,1 \mu_B^{13}/$  близок к величине  $9,0 \mu_B$  для свободного момента.

В седьмой колонке дана относительная величина  $\Delta N/N$ , равная  $(N_{0,05^\circ} - N_{1,5^\circ}) / N_{1,5^\circ}$ . В последней колонке приведено полученное значение спин-спиновой амплитуды тербия.

Заметим, что ввиду насыщения кривой Бриллюэна /формула /5// при  $P_N \approx 100\%$  неопределенность в температуре в случае образца  $TbAg$  практически не влияет на результат. Не сказывается и наличие атомов серебра в элементарной ячейке  $TbAg$ , так как поляризация ядер серебра незначительна ввиду малого магнитного момента ядер серебра и низкого значения поля  $H$  на ядрах немагнитных ионов в соединениях редкоземельных элементов.

### Обсуждение результатов

Измерение спин-спиновой амплитуды рассеяния тепловых нейтронов ядрами тербия методом дифракции на антиферромагнетиках при сверхнизких температурах показало высокую чувствительность этого метода. Для разности амплитуд рассеяния тербия  $\Delta a = a_+ - a_-$  получено значение  $-0,35 \pm 0,14$  ф, сравнимое по малости величины со значением для  $^{19}F^{4/}$ , измеренным методом дифракции поляризованных нейтронов на поляризованных ядрах. Для спин-некогерентного сечения рассеяния нейтронов ядрами тербия /формула /2// получено значение  $5 \pm 4 \cdot 10^{-3}$  барн. Верхняя оценка, существовавшая в литературе /14/ до настоящей работы, была равна 1 барну.

Используя выражение  $a_{\pm} = R_{\pm} - \sum \frac{\lambda \Gamma_n^{\pm}}{2E_0}$ , связывающее

амплитуду рассеяния с параметрами резонансов /нейтронной шириной  $\Gamma_n$ , энергией резонанса  $E_0$ / и полагая равными эффективные радиусы потенциального рассеяния  $R_+$  и  $R_-$ , можно рассчитать значение  $\Delta a_{расч.}$ , обусловленное вкладом положительных уровней /известных до энергии 113 эВ /15//. Оно равно:  $\Delta a_{расч.} = -0,65 \pm 0,15$  ф, и ошибка связана в основном с возможной неопределенностью в спиновой идентификации уровней при энергии выше 74 эВ.

Различие в значениях  $\Delta a$  и  $\Delta a_{расч.}$  является в принципе указанием на вклад отрицательных уровней в эффективное сечение взаимодействия тепловых нейтронов с ядрами. В случае  $^{159}Tb$  существование вклада

отрицательных уровней следует, как известно, из различия экспериментального  $25,5 \pm 1,0$  и расчетного  $8 \pm 1$  барн сечений радиационного захвата тепловых нейтронов ядрами тербия. Однако спины ближайших отрицательных уровней  $^{160}Tb$  не известны. Полученный в данной работе результат является косвенным /ввиду невысокой точности/ указанием в пользу преобладания вклада отрицательных уровней со спином  $J = 1 + 1/2$ .

Малое значение спин-спиновой амплитуды рассеяния нейтронов ядрами тербия практически исключает возможность исследований сверхтонких взаимодействий в тербии с применением поляризованных мишеней и пучка тепловых нейтронов. Представляет интерес измерение спин-спиновых амплитуд рассеяния нейтронов для других редкоземельных элементов.

Авторы благодарны Л.Б.Пикельнеру, проявлявшему постоянный интерес к работе, Б.А.Родионову и Б.И.Аполлонову за помощь в проведении измерений.

### Литература

1. M.E.Rose. *Nucleonics*, 3, No. 6, 23 (1948).
2. Y.Ito, C.G.Shull. *Phys.Rev.*, 185, 961 (1969); R.I.Schermer. *Phys.Rev.*, 130, 1907 (1963).
3. В.Барышевский, М.И.Подгорецкий. *ЖЭТФ*, 47, 1050 /1964/.
4. A.Abragam, G.L.Bacchella, H.Glattli, P.Meriel, M.Pinot, J.Piesvaux. *Phys.Rev.Lett.*, 31, 776 (1973).
5. F.L.Shapiro. *Research Appl. of Nuclear Pulsed Systems, Proceed. of a Panel... Dubna 1966, Vienna, IAEA*, 176, 1967; Всесоюзная летняя школа по ядерной спектроскопии при ядерных реакциях. *Лекции... Обнинск /1966/, 236 /1967/.*
6. R.I.Schermer, M.Blume. *Phys.Rev.*, 166, 554 (1968).
7. A.Herpin, P.Meriel. *Journ. de Physique*, 34, 423(1973).
8. В.П.Алфименков, Г.П.Жуков, Г.Н.Зимин, Л.Ласонь, Ю.Д.Мареев, О.Н.Овчинников, Л.Б.Пикельнер, И.М.Саламатин, В.Г.Тишин, Ф.Шапиро, Э.И.Шарапов. *ЯФ*, 17, 13 /1973/.



9. *W.L.Roth. Phys.Rev., 110, 1333 (1958).*
10. *K.Okado, T.Shinjo. Journ. Phys.Soc. Japan, 36, 1017 (1974).*
11. *Hang Nam Ok, James G.Mullen. Phys.Rev., 168, 550 (1968).*
12. *S.Quezel-Ambrunaz, E.F.Bertaut. Sol.St. Comm., 11, 605 (1972).*
13. *J.W.Cable, W.C.Koehler, E.O.Wollan. Phys.Rev., 136, A240 (1964).*
14. *S.S.Malik, M.Kamal. T.Turano, J.S.Desjardins. Phys. Rev., B8, 2595 (1973).*
15. *Neutron Cross Sections BNL-325, III ed., 1, 1973.*

Рукопись поступила в издательский отдел  
13 февраля 1975 года.