

Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова

**В.Л. АКСЕНОВ, А.М. БАЛАГУРОВ**

# **ОСНОВЫ НЕЙТРОНОГРАФИИ**

Учебное пособие

Москва 2022

**Основы нейтронографии:** Учебное пособие. / В.Л. Аксенов, А.М. Балагуров. – М.: Издательский дом МГУ, 2022. – 579 с. – (Классический университетский учебник).

Излагаются физические основы методов рассеяния нейтронов низких энергий для исследований структуры и динамики вещества в конденсированном состоянии. Учебное пособие написано на основе курсов лекций, читаемых авторами на физическом факультете Московского государственного университета имени М. В. Ломоносова.

Книга состоит из трех частей. Первая часть содержит последовательное изложение принципов теории рассеяния нейтронов низких энергий. Вторая часть посвящена способам получения и формирования пучков нейтронов, а также их регистрации. Третья часть посвящена базовым экспериментальным методам нейтронографии, дано описание принципов устройства экспериментальных установок и проведения измерений, а также методов интерпретации экспериментальных данных, основанных на изложенной в первой части теории.

Для студентов, аспирантов и научных работников, работающих или начинающих работать в области исследований физических, химических и биологических систем на микроскопическом уровне.

Рецензенты:

доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник НИЦ  
«Курчатовский институт» П.А.Алексеев

доктор химических наук, профессор МГУ им. М.В.Ломоносова Л.А.Асланов



**ОГЛАВЛЕНИЕ**

ПРЕДИСЛОВИЕ К СЕРИИ (В.А.Садовничий)	5
ПРЕДИСЛОВИЕ	15
ВВЕДЕНИЕ	18
<b>ЧАСТЬ I. ПРИНЦИПЫ ТЕОРИИ РАССЕЙЯНИЯ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ</b>	<b>36</b>
<b>ГЛАВА 1. ЭЛЕМЕНТЫ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ</b>	<b>36</b>
<b>§ 1.1. Свойства нейтрона</b>	<b>36</b>
<b>§ 1.2. Нейтрон и фундаментальные проблемы физики</b>	<b>40</b>
1.2.1. $\beta$ -распад свободного нейтрона	41
1.2.2. Электрический дипольный момент нейтрона	43
1.2.3. Антинейтрон	45
<b>§ 1.3. Взаимодействие нейтронов с атомными ядрами</b>	<b>46</b>
1.3.1. Ядерный потенциал	47
1.3.2. Нейтронные резонансы	48
1.3.3. Нейтронные эффективные сечения	50
<b>§ 1.4. Распространение нейтронов в веществе</b>	<b>52</b>
1.4.1. Замедление и диффузия нейтронов	52
1.4.2. Нейтронное поле	54
1.4.3. Уравнение переноса нейтронов	57
1.4.4. Термализация нейтронов	59
<b>ГЛАВА 2. ЭЛЕМЕНТАРНАЯ ТЕОРИЯ РАССЕЙЯНИЯ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ</b>	<b>62</b>
<b>§ 2.1. Упругое рассеяние на потенциале</b>	<b>62</b>
<b>§ 2.2. Длина рассеяния</b>	<b>67</b>
<b>§ 2.3. Псевдопотенциал Ферми</b>	<b>72</b>
<b>§ 2.4. Основные формулы рассеяния</b>	<b>80</b>
2.4.1. Золотое правило Ферми	81
2.4.2. Когерентное и некогерентное рассеяния	84
<b>§ 2.5. Эффекты некогерентности</b>	<b>86</b>
2.5.1. Спиновая некогерентность	86

	2.5.2. Композиционная некогерентность	89
	2.5.3. Общие замечания	90
<b>ГЛАВА 3.</b>	<b>НЕЙТРОННО-ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ</b>	<b>92</b>
	§ 3.1. Оптический потенциал	93
	§ 3.2. Рассеяние при скользющем падении	97
	3.2.1. Зеркальное отражение	97
	3.2.2. Формулы Френеля	100
	3.2.3. Незеркальное рассеяние	105
	§ 3.3. Дифракция в трехмерных периодических структурах	109
	3.3.1. Кинематическая дифракция	110
	3.3.2. Метод Эвальда	112
	3.3.3. Динамическая теория дифракции	114
	§ 3.4. Малоугловое рассеяние нейтронов	116
	3.4.1. Общие замечания	117
	3.4.2. Интенсивность рассеяния	118
	3.4.3. Законы Гинье и Порода	120
	3.4.4. Фрактальные и диффузные поверхности	123
<b>ГЛАВА 4.</b>	<b>ФОРМАЛИЗМ КОРРЕЛЯЦИОННЫХ ФУНКЦИЙ</b>	<b>125</b>
	§ 4.1. Формула Ван Хова	125
	§ 4.2. Функция рассеяния	128
	§ 4.3. Сечения рассеяния	131
	§ 4.4. Корреляционные функции	137
	4.4.1. Условие детального баланса	138
	4.4.2. Функции отклика	141
	4.4.3. Флуктуационно-диссипационные соотношения	144
<b>ГЛАВА 5.</b>	<b>ЯДЕРНОЕ РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ В КОНДЕНСИРОВАННОМ ВЕЩЕСТВЕ</b>	<b>147</b>
	§ 5.1. Рассеяние нейтронов в кристаллической решетке	147
	5.1.1. Частоты нормальных колебаний решетки	148
	5.2.1. Формула Ван Хова	151
	5.1.3. Упругое рассеяния	153
	5.1.4. Неупругое рассеяние	154
	§ 5.2. Коллективные возбуждения при структурном	156

	<b>фазовом переходе</b>	
	<b>§ 5.3. Простые классические жидкости</b>	162
	5.3.1. Статический структурный фактор	163
	5.3.2. Коллективные возбуждения	165
	5.3.3. Одночастичный отклик	169
	<b>§ 5.4. Квантовая бозе-жидкость</b>	173
	5.4.1. Спектр возбуждений в гелии-4	174
	5.4.2. Глубоко неупругое рассеяние в жидком гелии-4	181
	5.4.3. Параметр порядка	186
	<b>§ 5.5. Молекулярные твердые тела</b>	187
	5.5.1. Спектроскопия малых переданных энергий	187
	5.5.2. Метод фиксированного окна	191
<b>ГЛАВА 6.</b>	<b>МАГНИТНОЕ РАССЕЙАНИЕ НЕЙТРОНОВ</b>	194
	<b>§ 6.1. Магнитное взаимодействие</b>	196
	<b>§ 6.2. Амплитуда магнитного рассеяния</b>	202
	<b>§ 6.3. Рассеяние неполяризованных нейтронов</b>	209
	<b>§ 6.4. Сильно коррелированные электронные системы</b>	214
	6.4.1. Сильные электронные корреляции и рассеяние нейтронов	214
	6.4.2. Кристаллические электрические поля в магнитных материалах	217
	6.4.3. Коллективные возбуждения	221
<b>ГЛАВА 7.</b>	<b>ПОЛЯРИЗОВАННЫЕ НЕЙТРОНЫ</b>	225
	<b>§ 7.1. Спиновые состояния и вектор поляризации</b>	225
	7.1.1. Спиновые состояния	226
	7.1.2. Вектор поляризации	227
	<b>§ 7.2. Ларморова прецессия вектора поляризации</b>	231
	7.2.1. Адиабатический и неадиабатический режимы	234
	7.2.2. Принцип нейтронного спинового эха	236
	<b>§ 7.3. Преломление и расщепление пучка нейтронов в магнитных средах</b>	239
	7.3.1. Двухлучепреломление в однородной магнитной среде	239
	7.3.2. Расщепление пучка в магнитно-неколлинеарной среде	242
	7.3.3. Магнитные домены и кластеры	246
	7.3.4. Деполяризация нейтронного пучка	249

	<b>§ 7.4. Принципы рефлектометрии поляризованных нейтронов</b>	252
	7.4.1. Зеркальное отражение поляризованных нейтронов	253
	7.4.2. Прецессия при скользящем падении	258
	<b>§ 7.5. Стоячие волны при полном отражении</b>	263
	<b>§ 7.6. Рассеяние поляризованных нейтронов в магнетиках</b>	269
	7.6.1. Неупругое и упругое рассеяния	269
	7.6.2. Малоугловое рассеяние поляризованных нейтронов	276
<b>ГЛАВА 8.</b>	<b>ОБЩИЕ ВОПРОСЫ ТЕОРИИ РАССЕЯНИЯ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ</b>	280
	<b>§ 8.1. Уравнения Липпмана-Швингера</b>	280
	<b>§ 8.2. Оператор перехода (Т-оператор)</b>	283
	<b>§ 8.3. Борновское приближение в методе искаженных волн</b>	288
	8.3.1. Примеры нарушения борновского приближения	288
	8.3.2. Формальная схема приближения искаженных волн	294
	<b>§ 8.4. Поглощение нейтронов при рассеянии</b>	297
	<b>§ 8.5. О предельных переходах в теории рассеяния</b>	300
<b>ЧАСТЬ II.</b>	<b>ПОЛУЧЕНИЕ, ФОРМИРОВАНИЕ ПУЧКОВ И РЕГИСТРАЦИЯ НЕЙТРОНОВ</b>	307
<b>ГЛАВА 9.</b>	<b>ИСТОЧНИКИ НЕЙТРОНОВ</b>	307
	<b>§ 9.1. Исследовательские ядерные реакторы со стационарным потоком</b>	308
	9.1.1. Физические принципы работы ядерного реактора	308
	9.1.2. Пример реактора со стационарным потоком	311
	9.1.3. Современное состояние и тенденции развития реакторного парка	315
	<b>§ 9.2. Пульсирующие реакторы</b>	318
	9.2.1. Пульсирующие реакторы первого и второго поколения	318
	9.2.2. О пределе нейтронных потоков	321
	9.2.3. Пульсирующий реактор третьего поколения	323
	<b>§ 9.3. Импульсные источники на основе ускорителей</b>	325
	9.3.1. Современное состояние и тенденции развития	325
	9.3.2. Ускорители протонов высоких энергий	329

---

9.3.3. Ускорители электронов	331
9.3.4. Пульсирующий нейтронный бустер	333
9.3.5. Компактные ускорительные источники нейтронов	335
<b>§ 9.4. Сравнение источников</b>	<b>338</b>
<b>ГЛАВА 10. ЗАМЕДЛИТЕЛИ</b>	<b>343</b>
§ 10.1. Замедление быстрых нейтронов	343
§ 10.2. Поток нейтронов от источника	346
§ 10.3. Замедлители на стационарных источниках нейтронов	349
§ 10.4. Замедлители на импульсных источниках нейтронов	351
§ 10.5. Замедлители на импульсном реакторе ИБР-2	355
<b>ГЛАВА 11. ФОРМИРОВАНИЕ ПУЧКОВ НЕЙТРОНОВ</b>	<b>359</b>
§ 11.1. Коллиматоры	359
§ 11.2. Нейтронные зеркала	361
§ 11.3. Нейтронноводы	363
§ 11.4. Монохроматоры	368
§ 11.5. Механические прерыватели	372
§ 11.6. Кристаллические фильтры	378
§ 11.7. Поляризаторы и анализаторы поляризации	380
11.7.1. Поляризация нейтронов	380
11.7.2. Управление поляризацией	385
11.7.3. Линейный анализ поляризации	387
11.7.4. Трехмерный анализ поляризации	389
<b>ГЛАВА 12. ДЕТЕКТОРЫ НЕЙТРОНОВ</b>	<b>392</b>
§ 12.1. Ядерные реакции с медленными нейтронами	392
§ 12.2. Типы и основные характеристики нейтронных детекторов	393
§ 12.3. Газовые детекторы	396
§ 12.4. Сцинтилляционные детекторы	402
§ 12.5. Широкоапертурные газовые и сцинтилляционные детекторы	404
§ 12.6. Детекторы с высоким пространственным разрешением	408

ЧАСТЬ III.	<b>ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДЫ НЕЙТРОНОГРАФИИ</b>	412
ГЛАВА 13.	<b>ДИФРАКЦИЯ</b>	415
	§ 13.1. Общие замечания	415
	§ 13.2. Постановка задачи и предмет исследования	417
	§ 13.3. Формализм описания дифракции нейтронов на кристаллах	419
	13.3.1. Положение и интенсивность дифракционных пиков	420
	13.3.2. Формула Брэгга-Вульфа	423
	13.3.3. Дифракция как фурье-преобразование структуры	423
	13.3.4. Форма узлов обратной решетки	425
	13.3.5. Интенсивность дифракционных пиков	426
	§ 13.4. Нейтронные дифрактометры	428
	13.4.1. Основные параметры нейтронного дифрактометра	429
	13.4.2. Дифрактометр на стационарном источнике нейтронов	430
	13.4.3. Дифрактометр на импульсном источнике нейтронов	433
	§ 13.5. Задачи, решаемые на нейтронных дифрактометрах	437
	13.5.1. Структурный анализ монокристаллов	438
	13.5.2. Структурный анализ поликристаллов	440
	13.5.3. Анализ магнитных структур кристаллов	442
	13.5.4. Анализ переходных процессов	445
	13.5.5. Анализ микроструктуры кристаллов	447
	13.5.6. Анализ механических напряжений	450
	13.5.7. Анализ кристаллографической текстуры	453
ГЛАВА 14.	<b>МАЛОУГЛОВОЕ РАССЕЙНИЕ</b>	457
	§ 14.1. Общие замечания	457
	§ 14.2. Постановка задачи и предмет исследования	459
	§ 14.3. Некоторые особенности метода	462
	14.3.1. Вариация контраста	462
	14.3.2. Метод базисных функций	464
	14.3.3. Концентрированные системы	464
	14.3.4. Полидисперсные системы	466
	14.3.5. Малоугловое рассеяние на магнитных неоднородностях	467

---

	<b>§ 14.4. Спектрометры малоуглового рассеяния</b>	468
	14.4.1. Спектрометр МУРН на стационарном источнике	470
	14.4.2. Спектрометр МУРН на импульсном источнике	472
	14.4.3. Двухкристальный спектрометр МУРН	474
	<b>§ 14.5. Задачи, решаемые на спектрометрах МУРН</b>	477
<b>ГЛАВА 15.</b>	<b>РЕФЛЕКТОМЕТРИЯ</b>	482
	<b>§ 15.1. Общие замечания</b>	482
	<b>§ 15.2. Предмет исследования и постановка задачи</b>	484
	<b>§ 15.3. Рефлектометрический эксперимент</b>	487
	15.3.1. Нейтронные рефлектометры	487
	15.3.2. Проведение эксперимента	495
	<b>§ 15.4. Трехмерная рефлектометрия</b>	501
	15.4.1. Сечение рассеяния при скользящем падении	502
	15.4.2. Зеркальное отражение	505
	15.4.3. Незеркальное рассеяние	507
	15.4.4. Малоугловое рассеяние при скользящем падении	512
	<b>§ 15.5. Перспективы развития</b>	514
<b>ГЛАВА 16.</b>	<b>НЕУПРУГОЕ РАССЕЯНИЕ (НЕЙТРОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ)</b>	517
	<b>§ 16.1. Общие замечания</b>	517
	<b>§ 16.2. Постановка задачи и предмет исследования</b>	519
	<b>§ 16.3. Основные понятия и формулы</b>	525
	16.3.1. Прямая и обратная задачи в неупругом рассеянии	527
	<b>§ 16.4. Спектрометры неупругого рассеяния</b>	530
	16.4.1. Трехосный спектрометр	530
	16.4.2. Спектрометр по времени пролета «прямой» геометрии	532
	16.4.3. Спектрометр по времени пролета «обратной» геометрии	534
	16.4.4. Спин-эхо спектрометр	535
	<b>§ 16.5. Задачи, решаемые на спектрометрах неупругого рассеяния</b>	536
<b>ГЛАВА 17.</b>	<b>НЕЙТРОННАЯ РАДИОГРАФИЯ</b>	540
	<b>§ 17.1. Общие замечания</b>	540
	<b>§ 17.2. Постановка задачи и предмет исследования</b>	542

---

17.2.1. Виды контраста в нейтронной радиографии	543
<b>§ 17.3. Установки для нейтронной радиографии</b>	546
<b>§ 17.4. Задачи, решаемые методом нейтронной радиографии</b>	549
<b>ДОПОЛНЕНИЕ</b> Хронология работ по рассеянию нейтронов	552
<b>ЛИТЕРАТУРА</b>	
ЛИТЕРАТУРА К ЧАСТИ I	554
ЛИТЕРАТУРА К ЧАСТИ II	564
ЛИТЕРАТУРА К ЧАСТИ III	568
<b>ОБОЗНАЧЕНИЯ</b>	574
<b>ПРЕДМЕТНЫЙ УКАЗАТЕЛЬ</b>	577



## ПРЕДИСЛОВИЕ

Нейтроннография – совокупность методов рассеяния нейтронов низких энергий для исследований структуры и динамики вещества в конденсированном состоянии. Книга написана на основе курсов лекций, читаемых авторами на физическом факультете Московского государственного университета им. М.В.Ломоносова студентам старших курсов и в рамках магистерской программы «Нейтроннография наносистем и материалов».

Эта книга о рассеянии нейтронов низких энергий – теоретических основах, принципах экспериментальных методов и возможностях их реализации для исследований атомных и магнитных структур, а также коллективных возбуждений в конденсированном веществе. Методы нейтронной оптики позволяют изучать также современные проблемы физики фундаментальных взаимодействий, в том числе, за рамками Стандартной модели элементарных частиц. Некоторые из этих проблем будут затронуты в главе 1. Однако в основном наш предмет – это взаимодействие медленных нейтронов с конденсированным веществом, пучки нейтронов, их регистрация и интерпретация результатов экспериментов по рассеянию.

Рассеяние медленных нейтронов является мощным методом изучения структуры и свойств вещества в конденсированном состоянии. В настоящее время применение нейтронов заметно расширилось и включает в качестве объектов исследований твердые тела и жидкости, полимеры, биологические объекты, коллоидные дисперсии. Как экспериментальный метод рассеяние нейтронов используется в физике, химии, молекулярной биологии, фармакологии, науках о Земле, материаловедении, инженерных науках. Отметим также, что в 2021г. состоялся энергетический пуск высокопоточного исследовательского реактора ПИК в ПИЯФ – НИЦ «Курчатовский институт» (Гатчина), на базе которого планируется создание комплекса из более, чем сорока экспериментальных станций. В Объединенном институте ядерных исследований (ОИЯИ, Дубна) начато проектирование нового реактора «НЕПТУН» с рекордными параметрами, который заменит один из лучших в мире импульсный источник нейтронов – реактор ИБР-2 после вывода его из эксплуатации в конце 2030-х годов. Таким образом, стоит весьма серьезная задача по подготовке специалистов нового поколения.

Последнее наиболее полное описание методов рассеяния нейтронов на русском языке содержится в трехтомнике «Нейтроны и твердое тело» под общей редакцией профессора Р.П.Озерова, опубликованном в 1979 – 83 годах<sup>\*)</sup>. За прошедшие десятилетия многое изменилось: появились новые высокопоточные источники нейтронов, были найдены новые применения волновых свойств нейтронов, на новый уровень вышла техника эксперимента. Очевидно, что

---

\*) См. список литературы к Введению.

назрела необходимость современного изложения теории и эксперимента в этом важном для изучения строения вещества научном направлении.

Содержание книги отражено в оглавлении. Она состоит из трех частей, содержит последовательное изложение основ теории рассеяния нейтронов низких энергий в конденсированном веществе; способов получения, формирования пучков нейтронов и их регистрации; экспериментальных методов нейтронографии. Во второй и третьей частях дано описание принципов устройства соответствующих экспериментальных установок и проведения измерений, а также методов интерпретации экспериментальных данных, основанных на изложенной в первой части теории. Как показал наш опыт, изложение в одной книге основных положений теории и методов эксперимента способствует более глубокому пониманию физического содержания исследований.

Изложение рассчитано на различные категории читателей. Тем, кого заинтересовало только название книги достаточно прочитать Введение, в котором дан очерк исследований с нейтронами от их открытия до наших дней, а также главы 1 и 9, в которых даны элементарные сведения из нейтронной физики и общие сведения об источниках нейтронов. Студентам четвертого курса и бакалаврам дополнительно к указанным главам нужно прочитать главы 2 - 6 из первой части и необходимые, согласно программе учебных курсов, параграфы из второй и третьей частей. Наконец, студентам старших курсов, магистрам и тем, кто планирует работать в данной области, советуем изучить книгу полностью. В конце книги приведен список публикаций, цитируемых по ходу изложения. Кроме этого, в конце каждой главы приводится список рекомендованной литературы, в которой можно найти более подробное изложение отдельных разделов главы. Для читателей только Введения мы приводим там список наиболее известных в нашей стране специализированных монографий и учебных пособий, которые были использованы и нами при подготовке данного издания.

В конце книги приведены Список обозначений и Предметный указатель, в который включены термины, не отраженные в Оглавлении.

Учебное пособие предназначено для студентов, аспирантов и научных работников, работающих или начинающих работать в области использования рассеяния нейтронов для исследований структуры и динамики конденсированного вещества. Предполагается знание статистической физики и квантовой механики в пределах соответствующих курсов физического факультета МГУ им. М.В.Ломоносова.

Введение, главы 1 – 9, 15 написаны В.Л.Аксеновым, главы 10 – 14, 16, 17, Дополнение – А.М.Балагуровым, но общий план книги и ее содержание представляют собой совместный труд.

Авторы выражают признательность М.В.Авдееву, П.А.Алексееву, Л.А.Асланову, Е.А.Горемычкину, С.В.Кожевникову и Ю.В.Никитенко,

прочитавшим книгу в рукописи и сделавшим полезные замечания, и И.О.Гончаровой за неоценимый труд по подготовке рукописи к печати.

В.Л.Аксенов, А.М.Балагуров

Октябрь 2021 г., Дубна

### Об авторах



Виктор Лазаревич Аксенов, д.ф.м.н., профессор, член-корреспондент РАН, лауреат Государственной премии РФ (2000 г.). Главный научный сотрудник Лаборатории нейтронной физики им. И.М.Франка ОИЯИ, в 1989-2000 гг. директор. В 2012-2017 гг. директор, научный руководитель Петербургского института ядерной физики НИЦ «Курчатовский институт». В 2000-2021 гг. основатель и заведующий кафедрой нейтронографии МГУ им. М.В.Ломоносова.



Анатолий Михайлович Балагуров, д.ф.м.н., профессор, лауреат Государственной премии РФ (2000 г.) за разработку и реализацию новых методов структурной нейтронографии на импульсных и стационарных реакторах. Главный научный сотрудник Лаборатории нейтронной физики им. И.М.Франка ОИЯИ, профессор кафедры фундаментальных ядерных взаимодействий МГУ им. М.В.Ломоносова.

## ВВЕДЕНИЕ

### Нейтрон

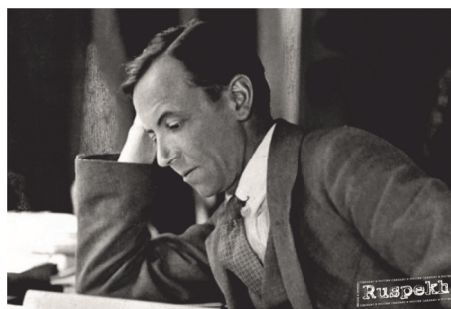
Согласно космологической модели раннего развития Вселенной приблизительно через  $10^{-36}$  сек после Большого взрыва, закончился период Космической инфляции и Вселенная представляла собой кварк-глюонную материю, в которой при дальнейшем понижении температуры произошел фазовый переход – бариогенез, когда кварки и глюоны объединились в барионы (подкласс адронов) – протоны и нейтроны. Именно тогда возникла барионная асимметрия – произошло асимметричное образование материи: в результате аннигиляции частиц и античастиц остались частицы, всего одна миллиардная часть. Это и есть наша Вселенная.

Когда Вселенная остыла до примерно  $10^9$  К, при столкновении протонов с нейтронами начали образовываться ядра дейтерия, соударения которых открыло путь к возникновению гелия (дозвездный нуклеосинтез). Примерно через пять минут около 1/4 нуклонов превратились в гелий. В результате почти все нейтроны оказались в связанном состоянии в ядрах. В дальнейшем свободные нейтроны образовывались в ядерных реакциях, вызываемых альфа- и гамма-частицами и затем участвовали в образовании химических элементов, особенно тяжелых, в процессе эволюции звезд.

Итак, первые нейтроны появились во Вселенной более 10 млрд. лет назад, в первые доли секунд ее жизни после Большого взрыва. В течение нескольких последующих минут эти нейтроны распались или поглотились, но на смену им возникли и все время продолжают возникать все новые нейтроны. Этот процесс продолжается непрерывно: во Вселенной происходит нуклеосинтез, образование нейтронных звезд, взрывы Сверхновых. На Земле нейтроны образуются вблизи поверхности под действием космического излучения и в глубине при спонтанном и вынужденном делении.

В результате в открытом пространстве на Земле на  $1 \text{ м}^2$  в каждую секунду падает до 10 нейтронов. Так было всегда. Однако человек получил нейтрон в свое распоряжение только в 1932 г., когда английский физик Джеймс Чедвик выполнил решающий эксперимент по его наблюдению.

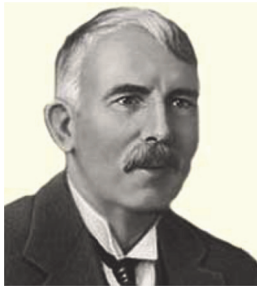
Сэр Джеймс Чедвик (20.10.1891 – 24.07.1947) английский физик, ученик Э.Резерфорда, лауреат Нобелевской премии по физике (1935), за открытие нейтрона.



Датой открытия нейтрона принято считать 17 февраля 1932 г., когда Чедвик направил в печать статью «Возможное существование нейтрона». Нам представляется весьма поучительным изложить кратко историю этого замечательного открытия [Франк И.М., 1983].

К открытию Чедвика привели исследования по искусственному расщеплению ядер  $\alpha$ -частицами. В 1909 г. Э.Резерфорд обнаружил рассеяние  $\alpha$ -частиц на небольшие углы, что привело его к созданию в 1911 г. ядерной модели атома, а в дальнейшем к открытию в 1919 г. протонов в составе ядер и построению протон-электронной модели ядра. В 1920 г. Резерфорд высказал предположение о том, что должно существовать простейшее нейтральное ядро, содержащее сильно связанные протон и электрон. Резерфорд предсказал основные свойства этого образования, которое он назвал нейтроном, такие как нулевой электрический заряд, сильное взаимодействие со сложными ядрами, высокую проникающую способность. После этого Резерфорд вместе с Чедвиком неоднократно предпринимали попытки обнаружить нейтрон.

Второй раз предположение о существовании нейтрона, возникло в связи с проблемой  $\beta$ -распада. В 1914 г. Чедвик экспериментально показал, что энергия электронов, испускаемых при  $\beta$ -распаде, имеет непрерывный спектр, хотя должен был быть дискретным. Этот факт противоречил закону сохранения энергии, поскольку получалось, что часть энергии терялась в процессах  $\beta$ -распада. А поскольку он долго не находил объяснения, то Нильс Бор выступил с идеей несохранения энергии. В.Паули высказал идею о нейтроне в своем письме 4 декабря 1930 г. участникам конференции в Тюбингене. Он писал: «Дорогие радиоактивные дамы и господа! ... Непрерывный  $\beta$ -спектр тогда стал бы понятным, если предположить, что при  $\beta$ -распаде вместе с электроном испускается еще и «нейтрон», таким образом, что сумма энергий «нейтрона» и электрона остается постоянной ...»



Э.Резерфорд (30.08.1871 – 19.10.1937) – сэр Эрнст, пэр Англии барон Резерфорд Нельсонский, основоположник ядерной физики, Нобелевская премия по химии «за проведенные им исследования в области распада элементов в химии радиоактивных веществ» (1908).

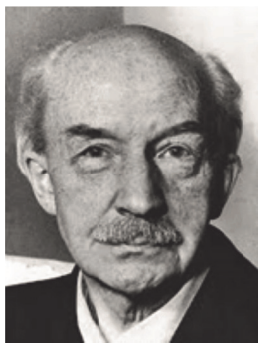
В том же 1930 г. появилась работа Вальтера Боте и Ханса Беккера, в которой было показано, что при облучении  $\alpha$ -частицами бериллия возникают  $\gamma$ -лучи с очень большой энергией. Их проникающая способность превышала способность самых жестких из известных тогда  $\gamma$ -квантов с энергией 2.62 МэВ.

Авторы назвали их «бериллиевыми лучами», которые появляются при захвате бериллия  $\alpha$ -частицы:



Нильс Бор (на фото справа, 07.10.1885 – 18.11.1962) – датский физик-теоретик, один из создателей современной физики. Нобелевская премия по физике «за заслуги в исследовании строения атомов и испускаемого ими излучения» (1922).

Вольфганг Паули (25.04.1900 – 15.12.1958) – швейцарский физик-теоретик. Нобелевская премия по физике «за открытие принципа запрета, который называют также принципом запрета Паули» (1945).

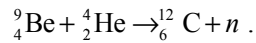


Вальтер Боте (08.01.1891 – 08.02.1957) – немецкий физик, Нобелевская премия по физике «за метод совпадений и сделанные в связи с этим открытия» (1954).

Следующий шаг сделали И.Кюри и Ф.Жолио в 1932 г. Они поставили на пути «бериллиевых лучей» парафин. Ток в ионизационной камере возрастал. Авторы использовали камеру Вильсона с водородом, в которой наблюдались следы протонов с энергией около 4.5 МэВ. При этом излучение, рождающее протоны, не оставляло следов. Это означало, что оно не имело электрического заряда. Авторы предположили, что протоны отдачи образуются в результате рассеяния фотонов. Оценки показали очень большую их энергию около 50 МэВ, причем одинаковую для разных веществ. Оба эти факта не находили объяснения. Несмотря на это, супруги Жолио-Кюри не отказались от гипотезы бериллиевых лучей.

Чедвик, который тесно общался с Резерфордом, и много обсуждал с ним эксперименты по обнаружению «частицы Резерфорда», получив результаты, Жолио-Кюри сразу увидел в них то, что искал. Чедвик провел расчеты, исходя из законов сохранения энергии и импульса, и оценил массу гипотетического

нейтрона, которая была близкой к массе протона. Он провел эксперименты с ионизационной камерой, соединенной с пропорциональным усилителем, что позволяло видеть на осциллографе ионизационный импульс отдельной частицы. Чедвик наблюдал ядра отдачи из водорода, гелия, аргона и других веществ. Наблюдаемый процесс описывался реакцией типа



Ирен Жолио-Кюри (12.09.1897 – 17.03.1956), французский физик, Нобелевская премия по химии совместно с Фредериком Жолио-Кюри (19.03.1900 – 14.07.1958), французским физиком «за выполненный синтез новых радиоактивных элементов» (1935).

Интересные детали об открытии читатель может найти в статье Чедвика «Воспоминания о поисках нейтрона» [Chadwick, 1962].

Открытие нейтрона имело принципиальное значение. Оно ломало устоявшееся представление о том, что частицы вещества обязательно должны иметь электрический заряд. После открытия нейтрона начался новый этап развития ядерной физики и, как следствие, всей физики, повлекший за собой освоение ядерной энергии.

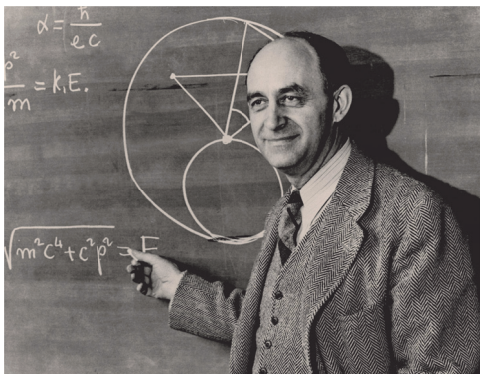
### Медленные нейтроны

Началу использования нейтронов послужило открытие Э.Ферми в 1934 г. в Риме эффекта замедления нейтронов до энергии около 1/40 эВ, что соответствует примерно комнатной температуре замедлителя. Ферми назвал такие нейтроны *тепловыми*. В этом и последующих годах Ферми вместе с пятью-шестью сотрудниками провел систематические исследования механизмов столкновения нейтронов с атомными ядрами, замедления и диффузии и тем самым заложил основы нейтронной физики и практических использований ядерной энергии. Первый ядерный реактор был построен под руководством Ферми в 1942 г. в Чикаго.

Все источники нейтронов основаны на использовании ядерных превращений, при которых испускаются нейтроны. Первыми интенсивными источниками для физических исследований были ядерные реакторы, основанные на реакции деления изотопа урана-235, в результате которой выделяется 2 или 3



нейтрона (в среднем 2.5). Нейтроны деления имеют среднюю энергию около 1 МэВ. Нейтроны с энергией от 0.1 до 14 МэВ получили название *быстрых*. Однако сечение деления  $U^{235}$  нейтронами с энергией  $\leq 1/30$  эВ приблизительно в 450 раз больше, чем быстрыми нейтронами. Поэтому для эффективного использования данной реакции нейтроны замедляют в специальных устройствах – замедлителях, за счет столкновения исходных нейтронов с веществом замедлителя. Такие реакторы называют *тепловыми*. Замедление может быть неполным (т.е. не достигать тепловой области), когда нейтроны поглощаются в основном при энергиях, соответствующих нейтронным резонансам в ядрах при энергии от 1 эВ до 0.1 МэВ. Такой реактор называется *реактором на резонансных нейтронах* или *промежуточным*. Реактор без замедлителя работает на быстрых нейтронах. Такие реакторы называют реакторами на быстрых нейтронах или *быстрыми реакторами*.



Итальянский физик Энрико Ферми (29.09.1901 – 30.11.1954), изобрел и руководил созданием первого ядерного реактора, внес неизмеримый вклад в развитие физики элементарных частиц. Не менее значимы его достижения в квантовой и статистической механике. Нобелевская премия по физике (1938 г.) за «доказательства существования новых радиоактивных элементов, и связанное с этим открытие ядерных реакций, вызываемых медленными нейтронами».

Это деление нейтронов по энергиям на быстрые, тепловые и промежуточные, возникшее в связи с созданием ядерных реакторов (гл. 9), в последствии получило детализацию в зависимости от области применения. Для исследований конденсированного вещества методами рассеяния интерес представляют нейтроны с энергией  $< 1$  эВ. В таблице В1 представлено современное деление таких нейтронов на группы.

Деление нейтронов на группы в таблице В1 носит в определенной степени условный характер, ввиду размытости границ, зависящих от свойств замедлителя, но в целом оно соответствует энергетическим и пространственным масштабам исследуемых объектов.

Нейтроны с энергией  $< 1$  эВ Э.Ферми назвал *медленными*. Эта условная граница была введена Ферми в его основополагающей теоретической статье [Fermi, 1936], суммирующей предыдущие экспериментальные исследования со своими коллегами Э.Амальди, Б.Понтекорво и др. [Ферми, 1971, с. 643], на основе ряда обнаруженных различий в поведении нейтронов выше и ниже этой границы.



В частности, ниже 1 эВ меняется характер дальнейшего замедления нейтронов (средняя длина свободного пробега сокращается в четыре раза), меняется поведение нейтронов при упругом столкновении с водородом (угловое распределение нейтронов после соударения становится изотропным). Важно также, что при низких энергиях нейтронов при описании взаимодействия их с веществом не требуется последовательной теории ядерных сил, которой до сих пор нет. Потенциал ядра может быть представлен неким эффективным потенциалом.

Таблица В1. Классификация медленных нейтронов

Группа	Энергия, эВ	Скорость, м/с	Длина волны, нм
Ультрахолодные	$< 3 \cdot 10^{-7}$	$< 7.7$	$\geq 53$
Очень холодные	$3 \cdot 10^{-7} - 10^{-4}$	$7.7 - 140.0$	$53 - 3$
Холодные	$10^{-4} - 10^{-2}$	$140 - 1400$	$3 - 0.3$
Тепловые	$10^{-2} - 10^{-1}$	$1400 - 4.4 \cdot 10^3$	$0.3 - 0.1$
Надтепловые	$10^{-1} - 1$	$4.4 \cdot 10^3 - 14 \cdot 10^3$	$0.1 - 3 \cdot 10^{-2}$

Имеются и другие распределения нейтронов по энергетическим группам в области энергий 1 эВ и выше, но они нам не понадобятся. Нам вполне удовлетворяет скорректированная «реакторная» классификация: *быстрые* нейтроны ( $> 0.1$  МэВ), *промежуточные* (от 0.1 МэВ до 1 эВ) и *медленные* ( $< 1$  эВ), разделенные на группы в таблице В1.

Медленные нейтроны делятся на группы, в зависимости от проявления ими волновых свойств при взаимодействии с веществом. Проявление этих свойств определяется отношением длины волны нейтрона к размерам рассеивающего объекта. Чем меньше это отношение, тем слабее проявляются волновые свойства нейтрона. Так, если характерный размер рассеивающего объекта совпадает с межатомным расстоянием в твердых телах ( $\sim 0.1$  нм), то для нейтронов с энергией 0.1 эВ отмеченное выше отношение будет равно единице. Для нейтронов с энергией 1 кэВ оно будет равно 0.01. Поглощение нейтронов в веществе на расстоянии, сравнимом с длиной их волны, очень мало, а ослабление пучка нейтронов определяется процессами рассеяния. Сильно выраженные волновые свойства нейтронов обуславливают поведение, типичное для оптики фотонов: преломление нейтронных волн на границе раздела двух сред, полное внутреннее отражение, дифракцию, рассеяние на малые углы.

Классификация нейтронов в таблице В1 связана с использованием низких температур (хладогентов) для уменьшения энергии нейтронов (увеличения длины волны) по отношению к *тепловым* нейтронам, извлекаемых из канала теплового реактора. Распределение по скоростям тепловых нейтронов близко к

максвелловскому с максимумом при примерно 2.6 мэВ. Спектр тепловых нейтронов находится в интервале от 10 до 100 мэВ – это лишь малая часть всего возможного спектра нейтронов в реакторе, который простирается от 0 до 10 МэВ. В последние годы в связи с возросшим интересом к некристаллическим материалам, таким как полимеры, коллоиды, биологические объекты, наноструктурированные материалы, все большее распространение получают нейтроны с энергией от 0.1 до 10 мэВ (что соответствует температурному интервалу  $5.8 \div 58$  К) с длиной волны  $> 0.4$  нм. Такие нейтроны называют *холодными*. Дальнейшее понижение температуры замедлителя позволяет еще уменьшить энергию нейтронов (увеличить длину волны) и перейти к *очень холодным нейтронам* с энергией от 0.1 до 0.0001 мэВ. Нейтроны с энергией  $10^{-7}$  эВ и меньше называются *ультрахолодными*. Выделение таких нейтронов в отдельную группу связано с их особыми свойствами. Функция замедлителей состоит в увеличении выхода нейтронов в данном диапазоне энергий.

Для увеличения выхода *горячих (надтепловых)* нейтронов с энергией в интервале от 0.1 до 1 эВ используют «горячие источники». В отличие от тепловых ядерных реакторов непрерывного действия импульсные источники на базе ускорителей и импульсные реакторы на быстрых нейтронах имеют более широкий, на несколько порядков, диапазон энергий в сторону больших энергий. Первичные нейтроны имеют высокую энергию порядка нескольких МэВ. Однако их можно замедлить до требуемых энергий. В этом есть определенное преимущество импульсных источников.

Итак, *источник нейтронов* – это генерирующее нейтроны устройство (реактор или ускоритель) вместе с преобразователем нейтронов от генератора на нужный для экспериментов интервал энергии излучаемых нейтронов.

### Волновые свойства нейтрона

Одним из исходных положений квантовой механики является идея де Бройля (1924 г.) в распространении основных законов квантовой теории света на движение частиц: каждой свободно движущейся частице сопоставляется плоская волна\*, частота  $\omega$  и волновой вектор  $\vec{k}$  которой определяются энергией  $E$  и импульсом  $\vec{p}$  частицы, соответственно:

$$E = \frac{mv^2}{2} = \hbar\omega, \quad \vec{p} = m\vec{v} = \hbar\vec{k},$$

где  $\hbar$  – постоянная Планка,  $\hbar = h/2\pi$ . Таким образом, с движением со скоростью  $v$  частицы массой  $m$  связывается волновой процесс с частотой  $\omega$  и длиной волны

---

\* Строго говоря, отдельно взятый нейтрон не обладает волновыми свойствами. В квантовой механике они проявляются только в большом ансамбле. Это относится к любой квантовой частице. Обсуждение этого вопроса и обширный список литературы см. в недавнем обзоре [Бедняков, 2021].

$$\lambda = \frac{2\pi}{|\vec{k}|} = \frac{h}{mv}. \quad (B1)$$

Обсуждение идеи де Бройля перехода от классического вида уравнений для энергии и импульса частиц к волновому представлению (B1) обсуждается в курсах квантовой механики (см. § 3.1 и [Блохинцев, 2015, §7]).

Для проявления волновых свойств необходимо, чтобы длина волны по порядку величины была сравнима с геометрическими размерами исследуемого объекта. Нейтроны большой энергии при взаимодействии с веществом проявляют себя в большей степени как частицы. Так для нейтрона с энергией 10 МэВ длина волны де Бройля равна  $0.9 \cdot 10^{-5}$  нм, то есть порядка размера атомного ядра. Это означает, что в конденсированном веществе, где характерные размеры порядка 0.1 – 100 нм, нейтрон с большой энергией проявляет себя как частица. Поэтому в теории замедления (§ 1.4) нейтроны рассматриваются как точечные частицы, претерпевающие столкновения с ядрами, как правило, упругие.

Чем меньше энергия нейтрона, тем больше проявляются его волновые свойства в веществе, что следует из соотношения (B1), которое перепишем в виде:

$$\lambda = \frac{0.0286}{\sqrt{E}} \text{ [нм]}. \quad (B2)$$

Из этого выражения следует, что для тепловых нейтронов ( $E = 1/40$  эВ)  $\lambda = 0.18$  нм, что соответствует типичным межатомным расстояниям в конденсированном веществе. В этом случае может проявляться когерентность движения атомов (молекул) вещества, которая будет приводить к интерференции когерентно рассеянных волн, что и обуславливает явления оптического характера.

Оптические аналогии в свойствах нейтрона наблюдаются в различных диапазонах энергий, в том числе на ядерном масштабе, как в случае резонансного поглощения и рассеяния нейтронов свободными ядрами. Волновая природа нейтрона здесь сказывается в избирательной способности к поглощению и рассеянию с определенной энергией, а именно, в заметно большей вероятности поглощения и рассеяния при этих энергиях, по сравнению с ожидаемыми из геометрических соображений.

Отметим, что в квантовой физике пучок любых частиц проявляет оптические свойства. Однако в смысле исходных понятий оптики, описывающих распространение света, наиболее близкие аналогии наблюдаются для нейтронов очень низких энергий. Так для ультрахолодных нейтронов, энергия которых меньше  $10^{-7}$  эВ (длина волны больше 100 нм) оптические свойства почти такие же, как у видимого света. Для тепловых нейтронов оптика очень близка к оптике рентгеновских лучей с энергией кванта около 7 кэВ и длиной волны 0.18 нм.

С учетом вышесказанного, раздел нейтронной физики, в котором изучают явления, обусловленные существенно волновой природой нейтрона, называют *нейтронной оптикой*. К таким явлениям относятся преломление, отражение,

дифракция и малоугловое рассеяние. К оптическим свойствам нейтронов относится и их поляризация, которая появляется в результате расщепления спиновых состояний при преломлении нейтронного пучка в магнитном поле (гл. 7).

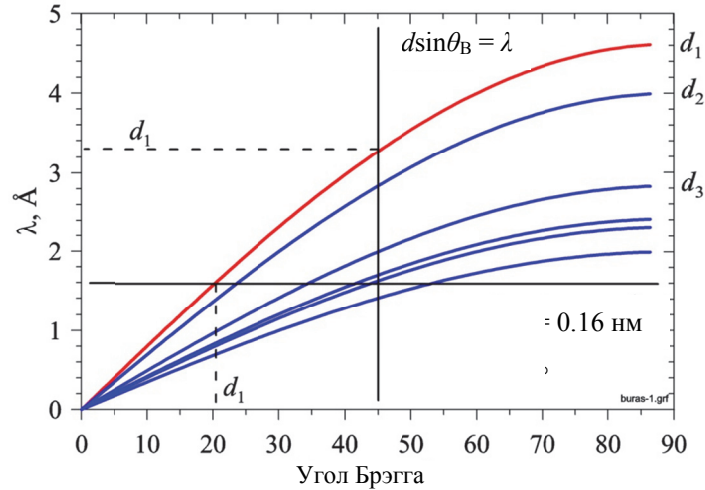
Не следует забывать, что между оптикой нейтронов и оптикой электромагнитного излучения имеются и существенные различия. В первую очередь, это связано с различной природой взаимодействия с веществом. Низкоэнергетическое электромагнитное излучение взаимодействует в веществе с электронными оболочками атомов и поэтому характеристики этого взаимодействия носят регулярный характер (оно тем сильнее, чем тяжелее атом) и могут быть вычислены в теории электромагнитного взаимодействия. Взаимодействие нейтронов с атомами более разнообразно (§ 1.3). Здесь только отметим, что в отличие от электромагнитного, нейтронное взаимодействие имеет изотопную и спиновую зависимости, что дает нейтронной оптике определенные преимущества. Но, в то же время, эти зависимости усложняют вопрос о когерентности и некогерентности при рассеянии нейтронов.

Сопоставляя нейтронные волны с рентгеновскими, нужно не забывать, что нейтрон, в отличие от фотона, имеет массу. Длина волны нейтронов обратно пропорциональна их скорости, и отсюда – одно из существенных отличий оптики нейтронов от оптики рентгеновских лучей. В экспериментах по оптике рентгеновских лучей в кристаллах выделяют определенную длину волны  $\lambda$  и эмпирически ищут угол рассеяния  $\theta$ . Например, в дифракции эти величины связаны с условием *Брэгга – Вульфа*:

$$2d \sin \theta_B = n\lambda. \quad (B3)$$

Здесь  $d$  – расстояние между отражающими рентгеновские лучи плоскостями в кристалле,  $\theta_B$  – угол между направлением луча и поверхностью этих плоскостей (угол Брэгга) и  $n$  – целое число. При этом угол падения должен быть равен углу отражения (зеркальное отражение).

Соотношение Брэгга – Вульфа, разумеется, применимо и к дифракции нейтронных волн. Поэтому обычная схема постановки опыта по дифракции нейтронов в принципе такая же, как для рентгеновских лучей с использованием фиксированной длины волны (монохроматического пучка). На рис. В1 уравнение Брэгга – Вульфа изображено графически для нескольких значений межплоскостных расстояний. Видно, что дифракционные пики могут быть зарегистрированы при углах Брэгга, соответствующих пересечениям горизонтальной линии  $\lambda_0 = 0.16$  нм с кривыми  $\lambda = 2d \sin \theta_B$ , например, для  $d_1$  при  $\theta_B \approx 20^\circ$ . Однако, возможен другой подход. А именно, может быть зафиксирован угол Брэгга (вертикальная линия на рисунке), и тогда дифракционные пики будут регистрироваться при некоторых дискретных значениях длин волн. Например, для  $\theta \approx 45^\circ$  пик с  $d_1$  будет зарегистрирован при  $\lambda \approx 0.33$  нм.



**Рис. В1.** Варианты формирования дифракционного спектра от кристалла с использованием монохроматического пучка нейтронов с разверткой по углу Брэгга или при фиксированном угле Брэгга с разверткой по длине волны. Показаны кривые, соответствующие уравнению Вульфа-Брэгга для нескольких межплоскостных расстояний  $d_n$ . Дифракционные пики будут зарегистрированы при углах Брэгга или длинах волн, соответствующих пересечениям горизонтальной линии  $\lambda_0 = 0.16$  нм или вертикальной линии  $\theta_0 = 45^\circ$  с кривыми  $\lambda = 2d \sin \theta_B$ . Отмечены значения  $\theta_B$  и  $\lambda$  для  $d_1$ .

Организация нейтронного дифракционного эксперимента по второму варианту возможна благодаря двум обстоятельствам:

– энергетический спектр нейтронов от источника имеет непрерывный характер,

– скорость тепловых нейтронов невелика и может быть легко измерена с использованием *метода времени пролета*.

В этом методе, который является основным на импульсных источниках нейтронов, то есть источников, периодически испускающих нейтроны в виде относительно коротких импульсов, измеряется время  $t$ , затрачиваемое нейтроном на пролет расстояний от источника до образца и затем от образца до детектора. Из уравнений В1 и В3 следует, что время пролета полного расстояния  $L$  от источника до детектора есть:

$$t = 505 L d \sin \theta_B \quad (\text{В4})$$

если измерять  $L$  в метрах,  $d$  – в Å, а  $t$  – в микросекундах, и обычно составляет от одной до нескольких десятков миллисекунд.

Метод времени пролета в силу некоторых своих особенностей оказался исключительно эффективен как в дифракционных, так и в других типах экспериментов по рассеянию нейтронов в конденсированных средах и в настоящее время успешно развивается [Аксенов и Балагуров, 1996; 2016] (гл. 13).

Первым из наблюдаемых нейтронно-оптических явлений стала брэгговская дифракция нейтронных волн, которая была продемонстрирована в 1936 г. [Mitchel and Powers, 1936] в простом опыте по отражению от кристаллов MgO нейтронов, получаемых в реакции  ${}^9\text{Be}(\alpha, n){}^{12}\text{C}$  от радиоактивного источника, окруженного парафиновым замедлителем. Низкая ( $10^7 - 10^8$  н/с) интенсивность источников не позволяла использовать это явление для структурных исследований. Такая возможность появилась после создания ядерных реакторов.

Заметим, что в те годы исследования на ядерных реакторах были направлены на получение ядерных и радиационных данных для ядерной науки и техники. В то же время именно тогда формировались основы нейтронной оптики, которые были сформулированы кратко Ферми в лекции «Оптические аналогии в свойствах нейтронов», прочитанной в Риме в 1949 г. [Ферми, 1952]. Анализ оптических аналогий в свойствах нейтронов был продолжен И.М.Франком [Франк, 1972] в связи с появлением новых аспектов – метода времени пролета и ультрахолодных нейтронов (§ 1.2). В лекциях Ферми не нашел отражения еще один важный раздел нейтронной оптики – использование поляризованных нейтронов. Об этом пойдет речь в главе 7.

Илья Михайлович Франк (23.10.1908 – 22.06.1990), академик Академии наук СССР (1968), лауреат Нобелевской премии по физике за открытие и истолкование эффекта Черенкова (совместно с П.А. Черенковым и И.Е. Таммом, 1958), лауреат двух Сталинских премий (1946, 1953) и Государственной премии СССР (1972). Основатель и первый директор (1957-1989) Лаборатории нейтронной физики Объединенного института ядерных исследований (Дубна, Московской области).



### Эксперименты по рассеянию нейтронов

Использование рассеяния различных излучений для анализа внутренней структуры вещества на атомном уровне началось в 1912 г. в экспериментах Лауэ-Фридриха-Книппинга по дифракции рентгеновских лучей в кристаллах. С тех пор экспериментальные методы по рассеянию на атомных структурах развиты для широкого круга излучений, включающего в себя рентгеновские лучи, электроны и нейтроны. В последнее время активно развиваются методы на основе рассеяния синхротронного излучения. Большое развитие получают рентгеновские лазеры на свободных электронах.

Каждое излучение обладает своими специфическими свойствами, обуславливающими разную чувствительность к разным характеристикам системы. Так, рассеяние рентгеновского излучения происходит на электронных оболочках атомов (основной задачей эксперимента является определение

распределения электронной плотности), электроны рассеиваются на электростатическом потенциале, сформированном электронами атома и его ядром, нейтроны взаимодействуют с ядрами атомов (может быть определена «ядерная плотность») и с магнитными моментами (определяется «магнитная плотность») атомов. При совместном применении различных методов к одному объекту может быть получена как пересекающаяся информация (и ее можно сравнивать), так и своя уникальная информация, доступная каждому из них. По этой причине современный структурный анализ, как правило, базируется на использовании комплексного подхода, объединяющего в себе различные дополняющие методы. Благодаря своим специфическим свойствам нейтронное излучение занимает свою нишу.

Будучи квантовой частицей, нейтрон в различных условиях может проявлять как волновые, так и корпускулярные свойства. Поэтому, как и для любой квантовой частицы, при описании состояния нейтрона используются и характеристики частицы, и характеристики волны. Для тепловых нейтронов длина волны соответствует типичным межатомным расстояниям в конденсированных средах, а энергия сравнима с энергиями их элементарных возбуждений, что позволяет одновременно исследовать и структуру вещества (т.е. как организованы его атомы и молекулы) и динамику (т.е. взаимодействие между атомами и молекулами).

Можно выделить следующие основные характеристики нейтронов, которые отличают их от других видов излучений и дают перспективу применения:

(1) *слабое возмущение вещества* нейтронами низких энергий определяет большую проникающую способность нейтронов, что позволяет изучать объемные материалы и использовать в эксперименте дополнительные устройства, такие как камеры высокого давления, печи, сложные криостаты, электромагниты и др.; другой аспект слабого возмущения связан с тем, что нейтроны не разрушают изучаемую систему, что особенно важно для систем с биологической активностью;

(2) *сильная чувствительность к водороду* определяет активное использование рассеяния нейтронов в изучении водородосодержащих веществ (в отличие, например, от рентгеновского излучения);

(3) *значительное различие в рассеивающих свойствах разных изотопов* одного и того же атома дает широкие возможности изотопного замещения, особенно в отношении водородосодержащих соединений (замещение водорода на дейтерий), и позволяет «затемнять» или «выделять» отдельные атомы или атомные области в веществе;

(4) *магнитное взаимодействие* нейтронов с атомами магнитных материалов позволяет использовать магнитное рассеяние нейтронов для восстановления распределения намагниченности в веществе и определения величины и направления магнитных моментов атомов.

Характерной чертой методического развития явилась также возможность существенного расширения диапазона используемых длин волн нейтронов в сторону больших значений  $\lambda$  ( $> 1$  нм, холодные нейтроны) за счет дополнительных к реактору холодных источников нейтронов (или холодных замедлителей) с гелиевыми температурами. Это позволяет одновременно с наноуровнем (1–100 нм) охватывать большие размеры (до 500 нм и выше), что особенно актуально для структурных исследований, прежде всего, сложных биологических комплексов.

Решение задачи структурной диагностики, то есть определение пространственного расположения структурных элементов системы в общем виде невозможно по причине большого количества атомов в изучаемых системах. Поэтому существуют специальные упрощения в зависимости от вида систем, которые определяют собой различные методики, использующие упругое рассеяние нейтронов. Несмотря на методические различия, в любой установке по нейтронному рассеянию имеются общие главные элементы.

В то же время каждый метод имеет целый ряд своих технических особенностей. Например, при исследовании магнитных систем дополнительную структурную информацию можно получить с использованием поляризованных нейтронов, пучки которых получают, пропуская исходные неполяризованные нейтроны через специальное устройство – поляризатор. В случае магнитного рассеяния нейтрон может сохранить свою поляризацию, а может поменять ее на противоположную (вероятностный процесс). Дифференциальное сечение рассеяния различается для двух видов рассеяния и может быть рассчитано исходя из распределения намагниченности внутри системы. Для разделения двух видов рассеяния перед детектором устанавливают другое устройство – анализатор, цель которого – пропустить нейтроны с заданной поляризацией. И поляризатор, и анализатор имеют дело с одной фиксированной поляризацией нейтронов. Для изменения поляризации пучка нейтронов перед рассеянием и после рассеяния используют дополнительные устройства – спин-флипперы (дословно «перебрасывающие спин»). Учитывая, что после рассеяния появляются две компоненты поляризации, а возможных поляризаций до рассеяния также две, в ходе эксперимента с поляризованными нейтронами можно получить четыре вида сечения рассеяния, отвечающие различным комбинациям поляризации до и после рассеяния. Каждое из них можно рассчитать, исходя из предполагаемой структуры системы, повышая, таким образом, надежность используемой модели и точность определяемых значений ее параметров.

Исследования были начаты Э.Ферми с сотрудниками на созданном в 1944 г. в Аргоннской национальной лаборатории (США) тяжеловодного реактора «Chicago Pile», CP-3 [Anderson, Fermi and Marshall, 1946; Fermi and Marshall, 1947]. Для этого использовалась так называемая *тепловая колонна* (колонна графита сверху реактора). В это же время наблюдалось полное отражение нейтронов от полированной поверхности [Fermi and Zinn, 1946; Fermi and



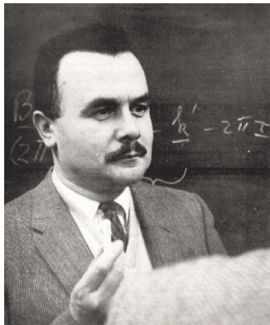
Marshall, 1947].

Одновременно Э.Волланом с сотрудниками были начаты структурные исследования с использованием дифракции нейтронов на другом ядерном реакторе в США – графитовом реакторе «Clinton Pile» мощностью 3 МВт, созданном в конце 1943 г. в Оак-Ридже. Здесь с участием К.Шалла были проведены первые дифракционные эксперименты и впервые была расшифрована антиферромагнитная структура (1948). Несколько позже Б.Брокхаузом на реакторе NRX (1947) в Чок-Ривере (Канада) были проведены эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов (1952) на созданном им первом трехосном спектрометре с целью изучения атомной динамики в кристаллах и жидкостях. После этого стало окончательно ясно, что рассеяние нейтронов является исключительно мощным экспериментальным методом изучения свойств вещества на атомном уровне. За эти пионерские исследования К.Шалл и Б.Брокхауз в 1994 г. были удостоены Нобелевской премии<sup>\*)</sup>.



Клиффор Шалл (23.09.1915 – 31.03.2001), США

Нобелевская премия по физике 1994 г. за разработку методики нейтронной дифракции



Бертрам Брокхауз (15.06.1918 – 13.10.2003), Канада

Нобелевская премия по физике 1994 г. за создание нейтронной спектроскопии

В Европе и Азии первый ядерный реактор (Ф-1, уран-графитовый), сооружаемый в рамках атомного проекта СССР, начал работать 25 декабря 1946 г. под руководством И.В.Курчатова в Москве в Лаборатории № 3, впоследствии

---

<sup>\*)</sup> Хронология работ по рассеянию нейтронов дана в Дополнении .

развившейся в головной институт атомной отрасли СССР – Институт атомной энергии им. И.В.Курчатова (ныне Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт») [Гагаринский и Яцишина, 2017].



Игорь Васильевич Курчатов (08.01.1903 – 07.02.1960), действительный член АН СССР, руководитель советского атомного проекта, лауреат Ленинской (1956 г.) и Сталинских (1942, 1949, 1951, 1953 гг.) премий. Инициатор и руководитель создания исследовательских реакторов в России и СССР.

С конца 50-х годов прошлого столетия в мире (в том числе и в СССР) начался реакторный бум. Ядерные реакторы строились и для исследований и для престижа – наличие ядерных реакторов служило показателем научно-технического уровня страны. Это были реакторы двойного назначения: для облучений в центральных каналах и для исследований на выведенных пучках. Первым реактором такого типа в России стал реактор ИРТ, сооруженный в 1957 г. в Москве в Институте атомной энергии, где были проведены первые в стране исследования структуры и динамики твердых тел методами рассеяния нейтронов.

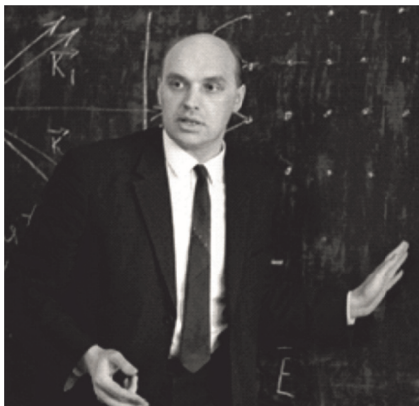
О ранних этапах развития нейтронных исследований конденсированных сред в мире и в Советском Союзе можно прочесть в обзорах Р.П.Озерова, который по праву считается одним из основоположников нейтронографии в СССР, опубликованных в журнале «Успехи физических наук» с 1949 по 1952 год. Ему же принадлежит термин «нейтронография» и идея написания уже упомянутого в Предисловии трехтомника «Нейтроны и твёрдое тело». Первые, поначалу эпизодические, в основном дифракционные эксперименты на ИРТ выполнялись силами специалистов из твердотельных и физико-химических академических институтов под руководством Р.П.Озерова. Систематические работы начались в середине 1960-х годов, после того как в ИАЭ были организованы группы, занимавшиеся неупругим рассеянием нейтронов (Н.А. Черноплеков, М.Г. Землянов) и структурными исследованиями (В.А. Соменков, С.Ш. Шильштейн).

Реактор ИРТ отличали конструктивная простота и надежность, и он стал родоначальником серии исследовательских пучковых реакторов, которые по инициативе И.В.Курчатова и под руководством Курчатовского института были построены в СССР и странах Восточной Европы. Среди них реакторы ВВР-М в Гатчине (1959 г.), СМ-2 в Димитровграде (1961 г.), ВВР-Ц в Обнинске (1964 г.), ИВВ-2М в Заречном (1966 г.), ИРТ МИФИ в Москве (1967 г.), ставшие основой ведущих научных центров нейтронных исследований в России.



Руслан Павлович Озеров (19.02.1926 – 06.07.2016) (справа) д.ф.м.н., профессор, с проф. Хартмутом Фуссом (Германия) во время школы по нейтронной физике (Дубна, 1982 г.), лауреат Государственной премии СССР (1986 г.) за цикл работ «Новые методы исследования твёрдого тела на основе рассеяния нейтронов стационарных ядерных реакторов» (1961 – 1984).

Виктор Александрович Соменков (23.02.1937 – 01.02.2018), российский физик, д.ф.м.н., профессор, заслуженный деятель науки РФ, лауреат Государственной премии СССР (1986 г.) за цикл работ «Новые методы исследования твёрдого тела на основе рассеяния нейтронов стационарных ядерных реакторов» (1961 – 1984), лауреат Государственной премии РФ (2000 г.) за разработку и реализацию новых методов структурной нейтронографии на импульсных и стационарных реакторах. Один из основателей структурной нейтронографии в России.



Николай Алексеевич Черноплеков (06.03.1930 – 04.08.2008), российский физик, член-корреспондент РАН, заслуженный деятель науки РФ (2006 г.), лауреат Государственной премии СССР (1976 г.) за разработку и промышленное производство новых материалов, лауреат Государственной премии СССР (1986 г.) за методы исследования твердого тела на основе рассеяния нейтронов стационарных ядерных реакторов. Руководитель научной программы Института атомной энергии по рассеянию нейтронов в твердых телах.

В эти же годы в Объединенном институте ядерных исследований (Дубна, Московской области) по инициативе и под руководством Д.И.Блохинцева был создан (1960 г.) исследовательский реактор для выведенных пучков нового типа – импульсный реактор периодического действия на быстрых нейтронах ИБР. Впоследствии была создана серия таких реакторов (гл. 9).



Дмитрий Иванович Блохинцев (11.01.1908 – 27.01.1979), член-корреспондент АН СССР и АН УССР. Герой социалистического труда. Лауреат Ленинской, Сталинской и Государственной премии. Руководитель проектирования и сооружения первой АЭС (г. Обнинск). Первый директор Объединенного института ядерных исследований. Изобрел и руководил созданием первого в мире импульсного реактора периодического действия.

### Современные тенденции

Исследования с использованием нейтронов прошли несколько этапов. Сначала они относились к физике частиц (изучались свойства самого нейтрона) и ядерной физике, которая собственно и оформилась в современном виде после открытия нейтрона. На этапе создания ядерных реакторов и ядерных изделий основное внимание уделялось ядерным данным, радиационной стойкости материалов (радиационное материаловедение) и живых объектов (радиационная биология). Исследования конденсированного вещества возникли как сопутствующие. Отмеченные выше пионерские исследования К.Шалла в Оак-Ридже начинались на оставленном при строительстве реактора, на всякий случай, горизонтальном канале для доступа к активной зоне [Shull et al., 1948]. Э.Ферми с коллегами проводили свои исследования по нейтронной оптике на тепловой колонне (брусек графита для получения медленных нейтронов), установленной над тяжеловодным «Чикагским котлом», построенном в Аргоннской национальной лаборатории в 1944 г. в рамках атомного (Манхэттенского) проекта.

Первыми чисто пучковыми реакторами стали пульсирующий реактор ИБР в Дубне (Московская область, СССР, 1960 г.) и реактор непрерывного действия в Брукхейвенской национальной лаборатории (США, 1965 г.).

С начала 70-х годов прошлого столетия начался этап специализированных высокопоточных реакторов для исследований на выведенных пучках, а с середины 1980-х годов появились высокопоточные импульсные источники на основе протонных ускорителей и импульсный быстрый реактор ИБР-2. Этот этап, который продолжается и сегодня, связан в основном с исследованиями конденсированного состояния. Довольно продолжительное время основными нейтронографическими методиками оставались дифракция нейтронов и нейтронная спектроскопия. Постепенно сформировались многие другие экспериментальные методы, такие как малоугловое рассеяние, рефлектометрия, техника спинового эха и другие, в настоящее время уже широко применяемые. К традиционным исследованиям добавились такие темы, как, например,

многослойные структуры, конформация макромолекул в растворах, липидные мембраны, кинетика необратимых процессов в кристаллах (твердофазные химические реакции, изотопный обмен), многочисленные инженерные приложения. Резко расширились границы диапазона внешних воздействий на исследуемый образец, в рамках которых возможны нейтронографические эксперименты: по температуре – это от тысячных долей кельвина до нескольких тысяч К, по магнитному полю – до нескольких десятков тесла, по давлению – до нескольких десятков ГПа. С увеличением нейтронных потоков возрастали возможности исследований, и интерес перемещался от изучения твердых тел и простых жидкостей в сторону мягкого (частично упорядоченного) вещества (soft matter). Особенно заметной эта тенденция стала в XXI веке.

### Основные труды по физике медленных нейтронов

Турчин В.Ф. (1963), *Медленные нейтроны*, М.: Гостехиздат.

Гуревич И.И. и Тарасов Л.В. (1965), *Физика нейтронов низких энергий*, М.: Наука.

Абов Ю.Г., Гулько А.Д. и Крупчицкий П.А. (1966), *Поляризованные медленные нейтроны*, М.: Атомиздат.

Озеров Р.П., Ред. *Нейтроны и твердое тело* (в 3-х томах). Т.1 Нозик Ю.З., Озеров Р.П. (1979), *Структурная нейтронография*. Т.2 Изюмов Ю.А., Найш В.Е. и Озеров Р.П. (1981), *Нейтронография магнетиков*. Т.3 Изюмов Ю.А. и Черноплеков Н.А. (1983), *Нейтронная спектроскопия*, М.: Энергоатомиздат.

Lovesey S.W. (1984), *Theory of neutron scattering from condensed matter*, vol. 1, 2, Oxford: Clarendon Press.

Williams W.G. (1988), *Polarized neutrons*, Oxford: Clarendon Press.

Игнатович В.К. (2006), *Нейтронная оптика*, М.: Физматлит.

Furrer A., Mesot J. and Strassle T. (2009), *Neutron scattering in condensed matter Physics*, World Scientific.

Carpenter J.M. and Loong C. – K. (2015), *Elements of slow-neutron scattering. Basics, techniques and applications*, Cambridge: Camb. Univ. Press.

## ЧАСТЬ I. ПРИНЦИПЫ ТЕОРИИ РАССЕЯНИЯ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ

### ГЛАВА 1. ЭЛЕМЕНТЫ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

По-видимому, нет другой частицы как нейтрон, с которой был бы связан такой широкий круг научных и технических тем. Нейтрон является одним из составных элементов атомных ядер и уже только поэтому играет важнейшую роль в ядерной физике, физике частиц, астрофизике и космологии. Ядерные реакции с участием нейтронов лежат в основе процессов ядерного деления и синтеза, составляющих основу ядерной энергетики. Нейтронный активационный анализ широко используется в современной экологии. В мощный метод изучения структуры и свойств вещества в конденсированном состоянии превратился метод рассеяния медленных нейтронов. Все эти научные направления имеют истоки в нейтронной физике, основные разделы которой были сформулированы, по-видимому, впервые Ферми в его «Лекциях по нейтронной физике» [Fermi, 1946] для сотрудников Лос-Аламосской национальной лаборатории. В этих лекциях содержится большое количество материала, который позднее вошел в учебники.

В этой главе кратко освещены только три раздела нейтронной физики, содержание которых необходимо для понимания последующего материала. Это – фундаментальные свойства нейтрона, взаимодействие с атомными ядрами и распространение нейтронов в средах.

#### § 1.1. Свойства нейтрона

Основой современных представлений о строении материи служит так называемая Стандартная модель (СМ) элементарных частиц (таблица 1.1.1).

Таблица 1.1.1. Схема Стандартной модели элементарных частиц

Элементарные частицы	Фермионы	Кварки $u \cdot d \cdot c \cdot s \cdot t \cdot b$ Лептоны $e^- \cdot e^+ \cdot \mu^- \cdot \mu^+ \cdot \tau^- \cdot \tau^+ \cdot \nu_e \cdot \bar{\nu}_e \cdot \nu_\mu \cdot \bar{\nu}_\mu \cdot \nu_\tau \cdot \bar{\nu}_\tau$
	Бозоны	Калибровочные бозоны $\gamma \cdot g \cdot W\text{-бозон} \cdot Z\text{-бозон}$ бозоны Хиггса $H^0$
	Гипотетические	Суперпартнёры Гейджино · Чарджино · Глюино · Гравитино · Нейтралино
		Другие Аксино · Хиггсино · Сфермион Другие $A^0$ · Дилатон · G · J · Тахион · X $\Upsilon \cdot W' \cdot Z' \cdot$ Стерильное нейтрино · Д $\bar{\nu}$ хи · Хамелеон
Составные частицы	Адроны	Барионы / Гипероны Нуклоны ( $p \cdot \bar{p} \cdot n \cdot \bar{n}$ ) · $\Delta \cdot \Lambda \cdot \Sigma \cdot \Xi \cdot \Omega$ Мезоны / Кварконии $\pi \cdot \rho \cdot \eta \cdot \eta' \cdot \phi \cdot \omega \cdot J/\psi \cdot \Upsilon \cdot \theta \cdot K \cdot B \cdot D \cdot T$
	Другие	Атомные ядра · Атомы · Экзотические атомы (Позитроний · Мюоний · Кварконий) · Молекулы
	Гипотетические	Экзотические адроны Экзотические барионы Дибарион · Пентакварк Экзотические мезоны Тетракварк · Глюоний · X(4140)
		Другие Мезонная молекула · Померон



Согласно этой модели нейтрон, как и другие нуклоны, относится к семейству барионов.

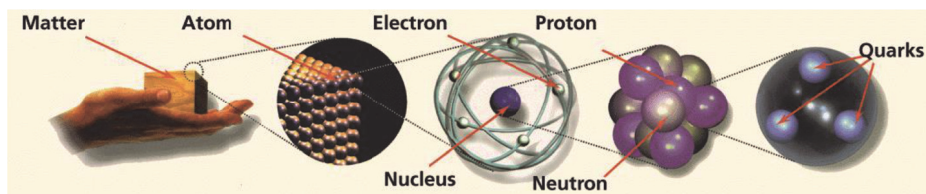


Рис. 1.1.1. Строение вещества

Барионы и мезоны образуют группу адронов, которые относятся к семейству составных частиц. Так, нейтроны и протоны состоят из кварков двух типов,  $u$  (up) и  $d$  (down) с дробными зарядами  $e_u = 2/3e$ ,  $e_d = -1/3e$  и спинами  $1/2$ . Каждый нуклон состоит из трех кварков. Поэтому нейтрон имеет структуру  $(u, d, d)$  с суммарным зарядом  $0$ , а протон – структуру  $(u, u, d)$  с суммарным зарядом  $e$ . Предполагается, что спины двух одинаковых кварков в нуклоне складываются в суммарный спин  $1$  и, вместе с противоположно направленным спином третьего кварка дают полный спин нуклона. Внутри адронов кроме кварков имеются векторные поля – глюоны. Кварки взаимодействуют между собой через обмен глюонами. Согласно мезонной теории ядерных сил, нуклоны непрерывно испускают и поглощают «виртуальные» мезоны и поэтому окружены мезонным облаком. Короткодействующее взаимодействие барионов и мезонов является сильным взаимодействием по классификации фундаментальных взаимодействий (три другие – электромагнитное, слабое и гравитационное). Все реакции нейтронов с ядрами осуществляются посредством сильного взаимодействия.

Основные свойства нейтрона, как составной частицы, хорошо изучены [Александров, 1992; Бунаков и Краснов, 2014]. Приведем их.

### Масса нейтрона

Точную оценку массы нейтрона можно получить из сравнений масс молекулярного водорода  $H_2$  и дейтерия  $D$ . Запишем выражения для этих масс в энергетических единицах:

$$m_n + m_p = m_D + \varepsilon_D ;$$

$$2m_p = m_{H_2} .$$

Здесь  $\varepsilon_D$  – энергия связи дейтрона, которую можно определить по энергии  $\gamma$ -лучей из реакции  $n + p = D + \gamma$ .

Вычитая вторую формулу из первой, получаем

$$(m_n - m_p) = \varepsilon_D - (m_{H_2} - m_D) .$$

Разность  $(m_{\text{H}_2} - m_{\text{D}})$  можно с большой точностью определить на масс-спектрографе. В настоящее время приняты следующие значения:

$$m_n - m_p = 1,2933318 \pm 0,0000005 \text{ МэВ} = 0,0013884484489 \pm 0,0000000005 \text{ а.е.м.};$$

$$m_n = 939,56533 \pm 0,00004 \text{ МэВ} = 1,00866491578 \pm 0,00000000055 \text{ а.е.м.}$$

Нейтрон является одной из немногих частиц, падение которой в гравитационном поле Земли можно наблюдать экспериментально. В частности, можно изучать эквивалентность инертной и гравитационных масс, которая является основой общей теории относительности. И если для макроскопических объектов эта эквивалентность проверена с очень высокой точностью, то для элементарных частиц эта величина лучше всего измерена для нейтрона. Оказалось, что относительная разница составляет всего  $2 \cdot 10^{-4}$ . Дополнительной мотивацией проведения таких исследований является существование теоретических моделей, предлагающих в качестве кандидатов на темную энергию так называемые хамелеонные скалярные поля, вводимые как вариант для объяснения ускоренного расширения Вселенной на больших расстояниях. Данные поля должны приводить к нарушению эквивалентности инертной и гравитационной масс. При этом величина нарушения зависит от локальной плотности материи и, как следствие, от размера исследуемого объекта, т.е. отсутствие нарушения слабого принципа эквивалентности на некотором уровне точности для макроскопических объектов с размерами более одного сантиметра не означает автоматически отсутствие нарушения на том же уровне точности для элементарной частицы, имеющей размер  $\sim 10^{-13}$  см.

Такого рода эксперименты постоянно совершенствуются и, в них получают довольно любопытные результаты. Так, в работе [Werner et al., 1988] с использованием нейтронного интерферометра был обнаружен эффект действия на движущийся нейтрон сил от вращения Земли.

### Электрический заряд нейтрона

Уже первые эксперименты по измерению ионизирующей способности нейтрона показали, что его заряд  $q_n$  не превышает  $10^{-3}e$  (заряда электрона). Более точные измерения заряда нейтрона проводились с помощью измерения отклонения коллимированного пучка нейтронов в электрическом поле.

С помощью таких измерений удалось установить верхний предел на *заряд нейтрона*:

$$q_n < 1,3 \cdot 10^{-13} e.$$

Еще более точно измеряют заряд нейтрона в экспериментах по двойному отражению пучка медленных нейтронов от идеальных кристаллов.

В таких измерениях получен принятый в настоящее время результат

$$q_n = (-0,4 \pm 1,1) 10^{-21} e.$$



Вопрос о существовании заряда у нейтрона тесно связан с более общим вопросом: почему электрические заряды элементарных частиц равны либо  $\pm e$  ( $e$  – заряд электрона), либо нулю. Теоретических запретов на существование у нейтрона небольшого заряда не существует, поэтому работы по его измерению с большей точностью продолжаются. Знание величины электрического заряда нейтрона или ограничение на его величину на некотором уровне точности необходимо, в частности, для прямой экспериментальной проверки равенства электрических зарядов протона и электрона. Экспериментальная методика, обычно применяющаяся в данных исследованиях, направлена на проверку электронейтральности материи, в которой неизбежно присутствуют нейтроны. Соответственно точность, с которой проверяется равенство электрических зарядов протона и электрона, не может превышать точности ограничения на величину заряда нейтрона и в настоящее время уже ограничивается этим значением. Как и в предыдущем случае перспективы этих измерений связывают с использованием нейтронного интерферометра.

### Магнитный момент нейтрона

Нейтрон является нейтральной дираковской частицей. Из уравнений Дирака следует, что любая элементарная частица с зарядом  $e$ , массой  $m$  и спином  $1/2$  должна обладать магнитным моментом

$$\mu = \frac{e\hbar}{2mc}.$$

Для массы электрона  $m_e$  эта величина совпадает с магнетоном Бора, а для массы протона она называется ядерным магнетоном:

$$\mu_N = \frac{e\hbar}{2m_p c}.$$

В теории Дирака магнитный момент протона должен равняться одному ядерному магнетону, а у незаряженного нейтрона он должен быть нулевым. Однако в 1934 г. российские физики С.А.Альшулер и И.Е.Тамм показали, что нейтрон должен иметь магнитный момент. Эксперимент подтвердил это предсказание. Экспериментально измеренное значение *магнитного момента нейтрона* оказывается равным

$$\mu_n = (-1,9130427 \pm 0,0000005)\mu_N.$$

Здесь знак минус означает, что магнитный момент и спин направлены в противоположные стороны. Величина магнитного момента протона

$$\mu_p = 2,8\mu_N.$$

Отличие магнитного момента от дираковского называют аномальным магнитным моментом. Стало быть, весь магнитный момент нейтрона является аномальным.

Существование у нейтрона магнитного момента, противоречащее уравне-

нию Дирака, говорит о сложной внутренней структуре нейтрона. Теории, которая позволила бы количественно рассчитать значение и знак магнитного момента нейтрона, в настоящее время не существует. Качественно существование аномального магнитного момента можно объяснить наличием вокруг нейтрона облака виртуальных мезонов, при движении которых возникает круговой ток, создающий аномальный магнитный момент нейтрона.

### Спин нейтрона

*Спин нейтрона* в единицах  $\hbar$  равен  $1/2$ . Существует несколько косвенных методов его определения. Например, спин дейтрона равен 1, спин протона –  $1/2$ , а орбитальный момент дейтрона – 0. Поэтому спин нейтрона может быть либо  $1/2$ , если спины нейтрона и протона параллельны, либо  $3/2$ , если они антипараллельны. Но магнитный момент дейтрона  $\mu_d \approx 0,9\mu_N$ , т.е. примерно равен сумме магнитных моментов протона и нейтрона. Следовательно, их спины параллельны и спин нейтрона равен  $1/2$ .

Сейчас уже существуют и прямые эксперименты по определению спина нейтрона. Если в опыте Штерна – Герлаха использовать неоднородное магнитное поле с градиентом  $\frac{\partial H}{\partial z} \approx 10$  кЭ/мм, то неполяризованный пучок нейтронов расщепляется в нем на две компоненты, соответствующие направлениям спина по и против градиента поля. Значит, проекция спина нейтрона на выделенную ось может принимать два значения, а это возможно только для спина  $1/2$ .

## § 1.2. Нейтрон и фундаментальные проблемы физики

Как одна из основных частиц нейтрон предоставляет уникальную возможность для проверки современных теорий, в том числе, за пределами Стандартной модели (СМ). Поскольку нейтрон участвует во всех видах известных фундаментальных взаимодействий, то исследование его электромагнитных свойств, а также слабых и сильных взаимодействий с его помощью позволяет понять, как устроены частицы и их взаимодействия и в то же время проникнуть в тайны образования и строения Вселенной. Поэтому эксперименты по изучению фундаментальных свойств нейтрона, такие как поиск и измерение электрического дипольного момента нейтрона, поиск нейтрон-антинейтронных осцилляций, уточнение времени жизни нейтрона, измерение гравитационной массы нейтрона, работы по изучению фундаментальных симметрий в процессах с участием нейтрона (от  $\beta$ -распада и нейтронной оптики до ядерных реакций и деления), продолжают оставаться актуальными для современной физики.

В современной физике частиц тесно переплелись и космология, и свойства Вселенной на ранней стадии образования, и, собственно, структура частиц и их взаимодействий, ядерная физика и физика фазовых превращений.

Для получения новых данных в этой области имеются два пути. Первый – это увеличение энергий ускоряемых, а затем сталкивающихся частиц и ядер в физике высоких энергий для поиска новых частиц. Этот путь требует создания дорогостоящих ускорителей и, соответственно, совместных усилий и участия многих стран.

Второй путь – это увеличение точности измерений в физике низких энергий, в частности в нейтронной физике. Для этой цели необходимы высокоинтенсивные источники нейтронов, поскольку для увеличения точности необходимо увеличение статистики, кроме того, необходимы также новые идеи, методики и нестандартное оборудование.

В этом параграфе мы рассмотрим некоторые актуальные задачи, которые, с одной стороны, направлены на получение новых данных о нейтроне, как фундаментальной частице, а с другой, эти данные необходимы для так называемой новой физики – физики за пределами СМ.

### 1.2.1. $\beta$ -распад свободного нейтрона

Нейтрон является простейшей системой для изучения  $\beta$ -распада, так как влияние сильных взаимодействий нуклонов отсутствует и сам процесс допускает, в принципе, однозначную интерпретацию. Поэтому представляет интерес изучение  $\beta$ -распада свободного нейтрона:

$$n \rightarrow p + e + \bar{\nu}_e, \quad (1.2.1)$$

где  $\bar{\nu}_e$  – электронное антинейтрино.

Этот распад обусловлен слабым взаимодействием и происходит по закону:

$$N(t) = N_0 \exp(-t/\tau_n).$$

Величину  $\tau_n$  называют *временем жизни нейтрона*. Эта величина связана с периодом полураспада  $T_{1/2}$  нейтрона соотношением  $\tau_n = T_{1/2} / \ln 2$ . Измерение этой величины с большой точностью очень важно по многим причинам. Во-первых, она позволяет определить константу слабого взаимодействия для легких кварков, из которых состоит нейтрон. Во-вторых, она важна для астрофизики, так как позволяет определять структуру нейтронных звезд и скорость конверсии водорода в звездах. Знание периода полураспада нейтрона необходимо для понимания физических процессов на солнце. В космологии период полураспада нейтрона прямо связан со скоростью образования гелия на начальном периоде существования Вселенной.

Долгое время основная идея измерения величины  $\tau_n$  состояла в том, что пучок нейтронов пропускать через определенный объем в вакууме, и измерять скорость распада. В этих экспериментах исследовались заряженные продукты распада на некотором участке траектории пучка. Более результативным оказался метод хранения ультрахолодных нейтронов (УХН) в ловушках, в котором регистрируются сами нейтроны, а не продукты их распада.

Теоретическое рассмотрение возможности удержания УХН было впервые опубликовано Я.Б.Зельдовичем в 1959 г. [Зельдович, 1959], экспериментально они были открыты Ф.Л.Шапиро с сотрудниками в 1968 г. в Дубне [Лушиков и др., 1969; Стрелков, 2004]. УХН уже сыграли большую роль в исследованиях фундаментальных свойств нейтронов. Их изучение и использование все больше расширяется. По своей значимости для нейтронной физики и физики вообще, открытие УХН можно сравнить с открытием медленных нейтронов.

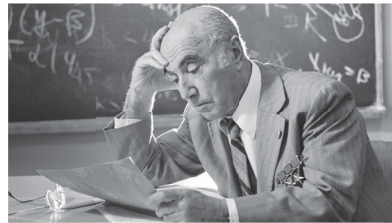
Благодаря своей огромной (порядка 100 нм) длине волны УХН взаимодействуют с веществом подобно световым волнам и испытывают полное отражение от стенок сосудов из различных материалов (например, бериллия). Малые скорости делают их также чувствительными к гравитационному полю Земли. Поэтому можно «налить» УХН в сосуд – (ловушку) и измерять скорость уменьшения числа нейтронов в ловушке за счет их  $\beta$ -распада. Именно таким путем было получено наиболее точное значение времени жизни нейтрона, значение которого, однако, постоянно уточняется. В середине 2019 г. была зафиксирована величина [Серебров, 2019]:

$$\tau_n = 879.3 \pm 0.63 \text{ сек.} \quad (1.2.2)$$

Определяющий вклад в получение этого результата внесла коллаборация ПИЯФ НИЦ «Курчатовский институт» (Гатчина) – ОИЯИ (Дубна) и ИЛЛ (Гренобль) в результате многолетних экспериментов на реакторе ИЛЛ.

Итак, нейтрон стабилен только в составе атомного ядра.

Яков Борисович Зельдович (08.03.1914 – 02.12.1987) выдающийся российский физик (физико-химик), академик АН СССР (РАН), один из создателей атомной и водородных бомб, трижды герой социалистического труда, лауреат Ленинской премии (1956) и четырех Сталинских (1943, 1949, 1951, 1953). Внес существенный вклад в развитие космологии и релятивистской астрофизики.



Федор Львович Шапиро (06.04.1915 – 30.01.1973) российский физик, член-корреспондент АН СССР, руководитель научной программы Лаборатории нейтронной физики им. И.М.Франка Объединенного института ядерных исследований.

В  $\beta$ -распаде нейтрона участвует *нейтрино* – элементарная частица, на которой в наши дни сконцентрировано внимание научного сообщества. Проблема нейтрино сегодня пронизывает всю физику элементарных частиц, космологию и астрофизику. Нейтрино рассматривается как один из главных претендентов на частицу темной материи.

Э.Ферми и его ученики (в первую очередь, Б.Понтекорво и Э.Майорана) сыграли решающую роль в становлении физики нейтрино. Ферми своей теорией  $\beta$ -распада (1934) перевел нейтрино из разряда «смутной гипотезы» в разряд гипотетической частицы. В 1946 г. Понтекорво предложил метод экспериментального наблюдения нейтрино, с помощью которого Ф.Райнес и К.Коуэн в экспериментах на потоках частиц от ядерного реактора в 1956 г. доказали существование нейтрино (Нобелевская премия по физике в 1995 г.)



Бруно Понтекорво (22.08.1913 – 24.09.1993), на снимке слева вместе с Э.Ферми, итальянский и советский физик, академик АН СССР (РАН). С 1934 по 1936 гг. работал в группе Э.Ферми. В 1950 г. переехал в СССР (в Дубну). Основоположник физики и астрофизики нейтрино. Первым предложил (1946) экспериментальный метод регистрации нейтрино (на основе обратного бета-распада от излучения из ядерного реактора). Предсказал осцилляции нейтрино (1957), ввел понятие стерильного нейтрино (1958) и многое другое.

### 1.2.2. Электрический дипольный момент нейтрона

Проблема существования *электрического дипольного момента* (ЭДМ) нейтрона тесно связана со свойствами симметрии процессов с участием элементарных частиц. В настоящее время особый интерес вызывает их инвариантность (или ее нарушение) по отношению к преобразованиям зарядового сопряжения  $C$ , пространственной инверсии  $P$  и обращения времени  $T$ . Операция  $C$  меняет частицу на античастицу. При этом ее заряд  $Q$  (электрический, барионный, лептонный) меняет свой знак:  $Q \rightarrow -Q$ .

При пространственной инверсии  $P$  происходит изменение знака пространственных координат  $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$ . При этом меняет знак и импульс, так как

$$\vec{p} = m \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} \rightarrow m \left( -\frac{\partial \vec{r}}{\partial t} \right) = -\vec{p}.$$

Угловой момент  $\vec{L}$  знака не меняет, поскольку

$$\vec{L} = [\vec{p} \times \vec{r}] \rightarrow [(-\vec{p}) \times (-\vec{r})] = \vec{L}.$$

Разумеется, знак спина также остается неизменным.

При инверсии времени происходит замена  $t \rightarrow -t$ . Это приводит к изменению знаков импульсов, угловых моментов и спинов.

ЭДМ частицы связан с плотностью ее заряда соотношением:

$$\vec{d}_n = \int \vec{r} \rho_{\text{зар}}(\vec{r}) d^3r \quad (1.2.3)$$

и имеет размерность  $e\vec{r}$ . Поэтому при пространственной инверсии он должен изменить знак:  $\vec{d}_n \rightarrow -\vec{d}_n$ . Сохранить инвариантность по отношению к пространственной инверсии  $P$  можно только в случае  $\vec{d}_n = 0$ . Следовательно, отличный от нуля ЭДМ элементарной частицы означает нарушение  $P$ -инвариантности.

Наличие ЭДМ приводит к добавочной энергии взаимодействия частицы с электрическим полем  $E$ :

$$W_d = -(\vec{d}_n \cdot \vec{E}). \quad (1.2.4)$$

Единственным выделенным направлением, связанным с элементарной частицей, является направление ее спина. Поэтому вектор дипольного момента может быть направлен по спину  $\vec{s}$  (или против него). Поэтому

$$W_d \approx (\vec{s} \cdot \vec{E}). \quad (1.2.5)$$

При инверсии времени  $t \rightarrow -t$  правая часть (1.2.5) меняет знак, ибо напряженность  $\vec{E}$  остается неизменной, а спин меняет направление на противоположное. Однако энергия взаимодействия  $W_d$  при инверсии времени не меняется. Отсюда следует, что отличный от нуля ЭДМ означает также и нарушение  $T$ -инвариантности [Бунаков и Краснов, 2014].

В настоящее время экспериментально установлено нарушение совместного преобразования  $C$  и  $P$  ( $CP$  инвариантности) в распадах  $K$ - и  $B$ -мезонов. Требование  $CPT$ -теоремы означает, что  $CP$ -нарушение должно сопровождаться нарушением  $T$  инвариантности. Отсюда следует, что должен существовать отличный от нуля ЭДМ у частиц, в том числе, у нейтрона. Стандартная модель (СМ) элементарных частиц дает оценку ЭДМ нейтрона на уровне  $d_n \approx 10^{-30} - 10^{-33} e \cdot \text{см}$ . Однако, как уже установлено, СМ имеет свои ограничения и сегодня идут интенсивные поиски новой физики за пределами СМ: имеется большое количество моделей нарушения  $CP$ -симметрии. Например, в моделях, которые объясняют барионную асимметрию Вселенной  $d_n \leq 10^{-26} e \cdot \text{см}$ .

Таким образом, измерение ЭДМ нейтрона позволяет, если не определить его величину, то, по крайней мере, произвести отбор теоретических моделей. Наиболее успешными оказались эксперименты с использованием УХН физиками ПИЯФ НИЦ КИ [Серебров, 2015]. В результате таких измерений удалось

достигнуть верхнего предела:

$$d_n < 5,5 \cdot 10^{-26} \text{ е} \cdot \text{см}. \quad (1.2.6)$$

Для получения оценки (1.2.6) потребовалось набирать статистику в течение примерно 10 лет. По-видимому, этот метод уже исчерпал свои возможности.

Одновременно с этими измерениями в Петербургском институте ядерной физики им. Б.П.Константинова (НИЦ «Курчатовский институт») уже много лет под руководством В.В.Федорова разрабатывается альтернативная методика измерения ЭДМ нейтрона при его дифракции на кристаллах, не обладающих центром симметрии. Связано это с тем, что внутренние электрические поля в таких кристаллах достигают значения  $10^5$  кВ/см, т.е. на четыре порядка превышают поля, достижимые в магнитно-резонансном методе.

### 1.2.3. Антинейтрон

Антинейтрон ( $\bar{n}$ ) был обнаружен в 1956 г., что было окончательным подтверждением основного результата теории Дирака – существование зарядово-сопряженных частиц. Антинейтрон имеет такие же характеристики, как и нейтрон. Отличие в направлении магнитного момента: у антинейтрона оно совпадает с направлением спина. Процесс  $\beta$ -распада антинейтрона имеет вид

$$\bar{n} \rightarrow \bar{p} + e^+ + \nu_e. \quad (1.2.7)$$

Периоды полураспада  $n$  и  $\bar{n}$  одинаковы.

В 1970 г. В.А.Кузьмин впервые теоретически рассмотрел возможность осцилляций нейтрон – антинейтрон ( $n - \bar{n}$ ) в связи с барионной асимметрией Вселенной и возможным объяснением этой асимметрии процессами с несохранением барионного заряда.

Барионная асимметрия Вселенной – отсутствие во Вселенной анти-вещества в сопоставимом с веществом количестве, является одной из самых захватывающих загадок современности. Из экспериментов по поиску аннигиляционных  $\gamma$ -квантов следует, что в нашем скоплении галактик доля антивещества  $< 10^{-4}$ . Из наблюдений реликтового излучения, по оценкам космологической плотности вещества, получаемой из скорости расширения Вселенной, а также из оценок масс видимого вещества галактик, величина этой асимметрии ( $10^{-8} - 10^{-10}$ ) совпадает по порядку величины с относительным избытком барионов над антибарионами на ранней стадии формирования Вселенной до момента  $t \sim 10^{-4}$  с, в который температура Вселенной достигла величины  $\sim 1$  ГэВ. Следует отметить, что это как раз та область времен и температур, которую сегодня пытаются достичь на ускорителях, создавая кварк-глюонную материю и исследуя ее свойства. А.Д.Сахаров в 1967 г. впервые заметил, что для объяснения барионной асимметрии необходимо предположить, что существует взаимодействие, во-первых, не сохраняющее барионное число, и

во-вторых, нарушающее  $CP$ -инвариантность.

В СМ такие взаимодействия отсутствуют, поэтому объяснение барионной асимметрии выходит за рамки СМ. В ряде современных теорий Великого объединения (объединенных моделей сильного, слабого и электромагнитного взаимодействий), а также в суперсимметричных теориях допускается нарушение барионного и лептонного чисел и, как следствие, распад протона, а также нейтрон-антинейтронные осцилляции. В настоящее время рядом международных коллабораций (Super-Kamiokande, Судан-2 и др.) ведется активный поиск нестабильности материи, связанной с распадом протона и с аннигиляцией антинейтронов от осцилляций в ядрах.

Следует отметить, однако, что экспериментальные ограничения на длину нейтрон-антинейтронных осцилляций, полученные в этих экспериментах, не превосходят по точности ограничения, полученные в прямом эксперименте на холодных нейтронах, проведенном в ИЛЛ в 1989 г. Использование современных источников холодных нейтронов может увеличить точность по крайней мере на порядок [Nesvizhevsky et al., 2018].

В СМ можно объяснить нарушение  $CP$ -симметрии в распадах  $K$ - и  $B$ -мезонов, однако при этом барионная асимметрия предсказывается на уровне  $10^{-25}$ , тогда как наблюдения свидетельствуют об уровне  $10^{-8} - 10^{-10}$ . Поэтому поиски механизма нарушения  $CP$ -симметрии, объясняющие и барионную асимметрию, являются одним из краеугольных камней современной физики.

### § 1.3. Взаимодействие нейтронов с атомными ядрами

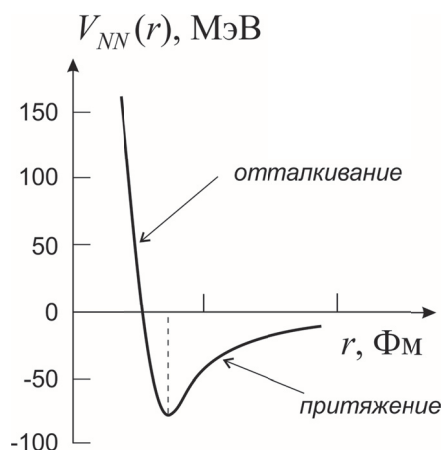
Атомное ядро представляет собой квантовую систему многих тел (нуклонов), связанных между собой нуклон–нуклонным взаимодействием, которое относится к разряду сильных фундаментальных взаимодействий (см. § 1.1). Описание такой системы из первых принципов является одной из нерешенных проблем современной физики. Принципиальная трудность состоит в том, что число нуклонов в ядре не так велико, чтобы можно было воспользоваться методами статистической физики и в то же время их достаточно много (больше трех), чтобы можно было последовательно провести квантово-механические расчеты. Поскольку нейтроны и протоны не являются элементарными частицами, а являются сложными структурными образованиями из трех валентных кварков, то, вообще говоря, последовательное определение структуры атомных ядер и ядерных сил – это задача квантовой хромодинамики. В силу указанных трудностей в современной ядерной физике используется модельный подход, при этом каждая из моделей описывает определенную совокупность свойств атомного ядра (см., например, [Ишханов и др., 2017]). Как будет показано в следующей главе, в теории рассеяния медленных нейтронов модельный потенциал взаимодействия нейтрона с ядром можно связать с экспериментально определяемой величиной – сечением рассеяния и тем самым избежать проблем



его вычисления. В этом параграфе мы без детального рассмотрения введем минимально необходимые модельные представления.

### 1.3.1. Ядерный потенциал

Нуклон-нуклонный потенциал состоит из двух частей – плавно меняющегося потенциала притяжения и резко растущего потенциала отталкивания (рис. 1.3.1).



**Рис. 1.3.1.** Схематическое представление нуклон-нуклонного потенциала  $V_{NN}$  в зависимости от расстояния между нуклонами.

Притяжение возникает в результате обмена виртуальными  $\pi$ -мезонами с радиусом действия около 1.5 единиц Ферми ( $\Phi_m = 1.5 \cdot 10^{-15}$  м). На расстояниях меньше 0.5  $\Phi_m$  потенциал притяжения становится сильно отталкивающим – отталкивающая сердцевина (hard core). Радиус этой сердцевины служит границей между ядерной физикой и квантовой хромодинамикой, согласно которой сердцевина представляет собой кварковый «мешок». При низких энергиях относительного движения нуклонов отталкивающую сердцевину можно не учитывать. В этом случае нуклон-нуклонный потенциал можно представить феноменологическим взаимодействием притяжения  $v(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$  и ввести усредненный потенциал взаимодействия нейтрона с ядром (*ядерное взаимодействие нейтрона*):

$$V(\vec{r}) = \int v(\vec{r} - \vec{r}') \rho(\vec{r}') d\vec{r}', \quad (1.3.1)$$

где  $\rho(\vec{r}')$  – распределение плотности нуклонов в ядре.

Проведенное рассмотрение соответствует сферической модели ядерных оболочек. Потенциал (1.3.1) достаточно хорошо аппроксимируется эмпирической функцией, предложенной американскими физиками Р. Вудсом и Д. Саксом,

$$V(r) = V_0 \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{r - R_0}{a}\right)}. \quad (1.3.2)$$

Потенциал Вудса-Сакса (1.3.2) представляет собой нечто среднее между гармоническим осциллятором и прямоугольной ямой (сглаженная прямоугольная яма) (рис. 1.3.2).

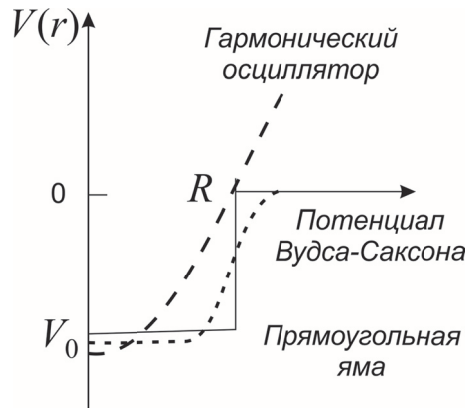


Рис. 1.3.2. Аппроксимации ядерного потенциала.

В формуле (1.3.2)  $V_0$  – глубина потенциала (в различных расчетах она меняется в интервале 40 – 60 Мэв),  $R_0$  – радиус ядра:

$$R_0 = 1,2 A^{1/3} \text{Фм}, \quad (1.3.3)$$

где  $A$  – число нуклонов в ядре (массовое число). То, что объем ядра пропорционален только числу нуклонов указывает на несжимаемость ядерной материи. Параметр  $a$  характеризует крутизну стенки. При  $a \rightarrow 0$  потенциал принимает вид прямоугольной ямы. В ядерной физике и в нейтронной оптике часто используется именно такой потенциал.

### 1.3.2 Нейтронные резонансы

При столкновении медленных нейтронов с ядрами кроме упругого рассеяния в поле ядерных сил (*потенциальное рассеяние*) возможно проникновение нейтрона в ядро. Для описания этого процесса используется модель составного (компаунд) ядра. Составное ядро – это сильно возбужденное ядро с массовым числом на единицу большим массового числа исходного ядра. Снятие возбуждения может происходить несколькими путями, называемыми каналами реакции. В случае медленных нейтронов эти реакции являются резонансными и наиболее вероятными являются реакция упругого резонансного рассеяния ( $(n, n)$  – реакция) и радиационного захвата ( $(n, \gamma)$  – реакция), которые энергетически возможны при взаимодействии нейтронов любых энергий с

любыми ядрами, за исключением ядра  ${}^4\text{He}$ , на котором  $(n, \gamma)$  – реакция не происходит.

*Резонансные реакции*, в отличие от нерезонансных, происходят в ядрах, энергия возбужденного состояния которых принимает дискретный ряд значений, соответствующих уровням ядра. Уровни с точно фиксированной энергией соответствуют только основным состояниям стабильных ядер. Все остальные уровни характеризуются энергетической шириной  $\Gamma$ . Согласно соотношению неопределенности  $\Gamma$  связана со временем жизни возбужденного состояния  $\tau$ :  $\Gamma = \hbar/\tau$ . Если энергия нейтрона попадает в интервал  $\Gamma$  неопределенности положения уровня, а энергетическое расстояние до ближайших уровней больше их ширины, то в сечении реакции наблюдается изолированный резонанс, соответствующий резонансной реакции.

При  $(n, n)$  – реакции возбуждение составного ядра снимается испусканием нейтрона и ядро переходит в исходное состояние. При реакции упругого резонансного рассеяния через составное ядро состояние ядра после столкновения совпадает с состоянием исходного ядра, как и в случае потенциального рассеяния. Разница в том, что потенциальное рассеяние может испытать нейтрон с любой энергией, а составные ядра могут образовать нейтроны с энергией выше некоторого порогового значения, характерного для каждого ядра. Так, образование резонансов тепловыми нейтронами маловероятно. Однако, несмотря на относительную малость вероятности резонансного упругого рассеяния при низких энергиях нейтронов, им полностью пренебрегать нельзя, поскольку процессы потенциального и резонансного рассеяния могут интерферировать. По существу их разделение есть результат формальной процедуры. Правильно говорить о нейтронных резонансах в потенциальном рассеянии. На опыте измеряется сечение упругого рассеяния, которое включает в себя оба процесса.

При радиационном захвате возбуждение составного ядра снимается испусканием одного или нескольких  $\gamma$ -квантов. В случае медленных нейтронов этот канал реакции преобладает. Вероятность распада возбужденного состояния определяется шириной возбужденного уровня  $\Gamma$ . При малых энергиях нейтрона  $E_n$  вероятность радиационного захвата больше вероятности упругого рассеяния:  $\Gamma_\gamma \gg \Gamma_n$ . При этом  $\Gamma_\gamma \approx \text{const}$ , а  $\Gamma_n \sim (E_n)^{1/2}$ . Таким образом, чем меньше энергия нейтрона, тем меньше вероятность распада возбужденного состояния. Вероятность распада  $(n, \gamma)$  тоже зависит от энергии нейтрона, но не так сильно.

При распаде с испусканием нейтрона ядро перейдет в основное состояние, а при распаде с испусканием гамма кванта ядро может переходить на многие менее возбужденные уровни. Это означает, что при испускании нейтрона возможен только один вариант протекания реакции, причем, без изменения состояния ядра (упругое рассеяние), а при испускании  $\gamma$ -кванта возможно несколько вариантов с передачей части энергии нейтрона ядру (неупругое рассеяние).

Кроме рассмотренных возможны и другие каналы распада составного ядра через резонансные реакции:  $(n, p)$  – испускание протона,  $(n, \alpha)$  – испускание  $\alpha$ -частицы,  $(n, f)$  – деление ядер,  $(n, n')$  – неупругое рассеяние с испусканием нейтрона и  $(n, 2n)$  – испускание двух нейтронов. Две последние реакции мы не рассматриваем, поскольку они происходят при высоких энергиях. Реакция захвата нейтрона ядром с испусканием заряженных частиц менее распространена по сравнению с реакцией захвата нейтронов с испусканием  $\gamma$ -квантов. Так, при сечении  $\sigma > 0.1$  барн число изотопов для реакции  $(n, p)$  составляет только 6 (изотопы  ${}^3\text{He}$ ,  ${}^7\text{Be}$ ,  ${}^{14}\text{N}$ ,  ${}^{35}\text{Cl}$ ,  ${}^{40}\text{K}$ ,  ${}^{76}\text{Br}$ ), а для реакции  $(n, \alpha)$  – 14 (изотопы  ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^{10}\text{B}$ ,  ${}^{17}\text{O}$ ,  ${}^{21}\text{Ne}$ ,  ${}^{33}\text{S}$ ,  ${}^{40}\text{K}$ ,  ${}^{59}\text{Ni}$ ,  ${}^{143}\text{Nd}$ ,  ${}^{149}\text{Sm}$ ,  ${}^{152}\text{Gd}$ ,  ${}^{153}\text{Gd}$ ,  ${}^{162}\text{Er}$ ,  ${}^{203}\text{Tl}$ ). Для реакции деления ядра с вылетом нейтронов и заряженных осколков при сравнительно больших значениях сечения реакции  $\sigma(n, f) > 30$  барн число изотопов равно 18 (соответствующие эти изотопам элементы: Ra, Th, U, Np, Pu, Am, Cm, Cf). Реакции с испусканием заряженных частиц используются в детекторах для регистрации рассеянных нейтронов (гл. 12). Они могут быть использованы для идентификации элементов структуры. Недавно был предложен оригинальный метод с использованием реакций с испусканием  $\gamma$ -квантов и заряженных частиц для регистрации усиленного в стоячей волне нейтронного волнового поля [Аксенов и др., 2006].

### 1.3.3. Нейтронные эффективные сечения

Различные типы взаимодействия нейтронов с веществом описывают с помощью *эффективного сечения столкновения*  $\sigma$  [Fermi, 1946]. Общую идею этого понятия рассмотрим с помощью рис. 1.3.3.

Сколлимированный пучок нейтронов плотностью  $n \left[ \frac{\text{частиц}}{\text{см}^3} \right]$  налетает на мишень в виде тонкой пластины площадью  $A$  и толщиной  $t$ , содержащей  $N_T$  ядер.

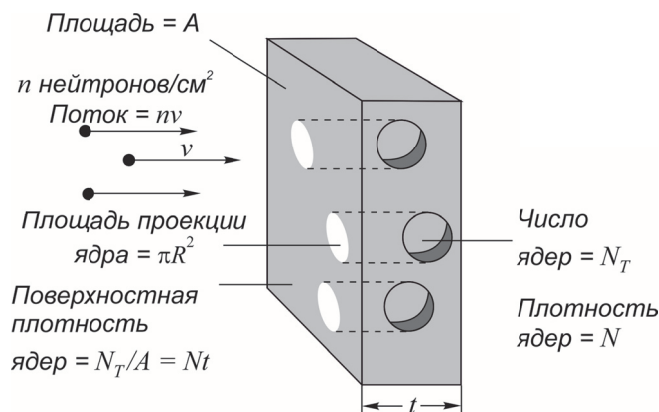


Рис. 1.3.3. Схематическое представление столкновения нейтронов с ядрами [Юз, 1954].

Плотность ядер обозначим  $N \left[ \frac{\text{ядер}}{\text{см}^3} \right]$ , тогда число ядер, приходящихся на  $1 \text{ см}^2$  мишени, равно  $Nt$ . Число нейтронов, проходящих через  $1 \text{ см}^2$  за  $1 \text{ с}$ , называют потоком  $\Phi_n$ ,  $\Phi_n = n\nu$  (подробнее см. § 1.4). Предполагается, что все нейтроны движутся с одинаковой скоростью. Величина  $n\nu$  по своей сути является плотностью потока, однако, в нейтронной физике принят более короткий термин – поток. Число реакций данного типа  $N_r$ , происходящих на  $1 \text{ см}^2$  за  $1 \text{ с}$  равно

$$N_r = \sigma N t n \nu, \quad (1.3.4)$$

где  $\sigma$  – коэффициент пропорциональности, называют нейтронным эффективным сечением реакции (столкновения). Эта величина представляет собой полную вероятность того, что нейтрон вступит в ядерную реакцию с  $N$  ядрами мишени, облучаемых пучком. Формулу (1.3.4) перепишем в виде:

$$\sigma = \frac{\text{Число столкновений на } 1 \text{ см}^2 \text{ за } 1 \text{ с}}{[\text{Падающий поток}] \cdot [\text{Плотность ядер}]} \quad (1.3.5)$$

Размерность  $\sigma$  – площадь. Действительно, т.к.  $[N_r] = \text{с}^{-1} \text{см}^{-2}$ ,  $[N] = \text{см}^{-3}$ ,  $t = [\text{см}]$ ,  $n = [\text{см}^{-3}]$ ,  $\nu = \text{см} \text{ с}^{-1}$ , то  $[\sigma] = \text{см}^2$ . Для большинства взаимодействий используют единицу  $10^{-24} \text{ см}^2 = 1 \text{ барн}$ .

Численное значение радиуса ядер, вычисленное из результатов опытов по рассеянию как заряженных частиц, так и нейтронов, равно

$$R = 1.5 \cdot 10^{-13} A^{1/3} \text{ см}. \quad (1.3.6)$$

Экспериментальные значения полных эффективных сечений меняются от элемента к элементу, оставаясь, однако, в разумном согласии с простым представлением эффективного сечения как площади поперечного сечения ядра

$$\sigma = \pi R^2 = \pi (1.5 \cdot 10^{-13})^2 A^{2/3} [\text{см}^2]. \quad (1.3.7)$$

Надо ожидать, что истинные эффективные сечения превышают  $\pi R^2$  из-за того, что нейтронные волны несколько отклоняются при дифракции на ядре. Эта дифракция аналогична оптической дифракции и поэтому угловой раствор ее имеет величину порядка  $\lambda/R$ .

В окрестности резонанса сечение процесса рассеяния описывается формулой Брейта-Вигнера:

$$\sigma(n, x) = \frac{\pi}{k^2} \frac{\Gamma_n \Gamma_x}{(E - E_r)^2 + \Gamma^2/4}. \quad (1.3.8)$$

Здесь  $E_r$  – энергия резонанса,  $\Gamma$  – полная ширина резонанса. Для изолированных резонансов (когда их ширины меньше расстояний между ними) полная ширина равна сумме парциальных ширин всех открытых каналов реакции:

$$\Gamma = \sum_i \Gamma_i, \quad (1.3.9)$$

Для нейтронных резонансов полная ширина складывается из нейтронной

ширины  $\Gamma_n$ , ширин распада с испусканием  $\gamma$ -квантов  $\Gamma_\gamma$ , а также из ее возможных распадов с испусканием протонов  $\Gamma_p$ ,  $\alpha$ -частиц  $\Gamma_\alpha$  и из деления  $\Gamma_{fis}$ .

Для неделящихся ядер  $\Gamma_{fis} = 0$ . При низких энергиях нейтронов нейтронные ширины пропорциональны малой величине  $kR_0$  ( $\sim 10^{-3}$ ), а протонные и  $\alpha$ -ширины малы из-за малой проницаемости кулоновских барьеров. Поэтому для медленных нейтронов

$$\Gamma_\gamma \gg \Gamma_n > \Gamma_p > \Gamma_\alpha$$

и полная ширина резонанса практически равна  $\Gamma_\gamma$ . Следовательно, основной вклад в сечение будет вносить реакция радиационного захвата нейтронов:

$$\sigma(n, \gamma) = \frac{\pi}{k^2} \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{(E - E_r)^2 + \Gamma^2/4}. \quad (1.3.10)$$

Рассмотрим, как ведет себя сечение взаимодействия низкоэнергетических нейтронов с ядрами при очень малых энергиях ( $E \rightarrow 0$ ):

$$\sigma(n, \gamma) = \frac{\pi}{k^2} \frac{\Gamma_n \Gamma_\gamma}{(E_r^2 + \Gamma^2/4)} \sim \frac{\Gamma_n}{k^2}, \quad (1.3.11)$$

где  $k^2 = 2m_n E_n / \hbar^2$

С учетом того, что нейтронная парциальная ширина  $\Gamma_n$  пропорциональна  $k$ , для малых энергий

$$\sigma_{n\gamma} \sim \frac{1}{k} \sim \frac{1}{v}, \quad (1.3.12)$$

где  $v$  – скорость нейтрона.

Зависимость (1.3.12) в нейтронной физике носит название закона  $1/v$ .

## § 1.4. Распространение нейтронов в веществе

В нейтронной физике вопросы, связанные движением нейтрона как частицы в различных средах, возникают во многих практических приложениях: при конструировании источников нейтронов, как реакторов и мишеней для ускорителей, так и замедлителей нейтронов; формировании нейтронных пучков; создании нейтронных систем, в радиационной биологии. Каждая из этих тем представляет собой отдельную сферу деятельности, выходящую за рамки данного пособия. Поэтому мы ограничимся изложением только основных понятий в этой области, поскольку физику, работающему с нейтронами, приходится в той или иной степени соприкасаться с названными темами.

### 1.4.1. Замедление и диффузия нейтронов

После открытия в 1934 г. медленных нейтронов Ферми вместе с Амальди провел систематические исследования диффузии и поглощения нейтронов в различных материалах. Были опубликованы две большие статьи – экспериментальная [Amaldi and Fermi, 1936] и теоретическая [Fermi, 1936],

посвященная распространению нейтронов в водородсодержащих веществах. Независимо Я.Б. Зельдович и Ю.Б. Харитон [Зельдович и Харитон, 1939; 1940] изучали теорию этих вопросов и получили близкие результаты. Явление замедления нейтронов заняло центральное место в нейтронной физике, поскольку оно лежит в основе физики тепловых ядерных реакторов и всех аспектов физики нейтронов низких энергий. Устройства, в которых происходит процесс замедления – замедлители, используются в качестве одного из основных элементов реактора на тепловых нейтронах для уменьшения энергии нейтронов деления (со средней энергией  $\sim 1$  МэВ) до тепловых энергий (порядка  $1/40$  эВ), необходимых для цепной реакции деления. Нейтрон, замедленный до тепловой энергии, блуждает в веществе замедлителя, пока не будет захвачен ядром. В результате образуется конечное ядро в возбужденном состоянии или произойдет деление конечного ядра.

Распространение нейтронов в материале замедлителя происходит в две стадии. Стадия движения, на которой энергия нейтронов выше температуры замедлителя, и постепенно уменьшается, называется замедлением. Стадия движения, на которой энергия нейтронов не изменяется, а равна в среднем энергии материала замедлителя, называется диффузией. Различие замедления и диффузии состоит в особенностях отдельных актов рассеяния. При замедлении происходит постепенное уменьшение кинетической энергии нейтронов. При диффузии кинетическая энергия нейтронов в среднем сохраняется. Хотя отдельный нейтрон может приобрести кинетическую энергию при движении навстречу ядру или потерять ее при движении вдогонку, но в среднем нейтроны будут сохранять кинетическую энергию: нейтроны совершают хаотическое движение по кривой Максвелла, описывающей распределение охлажденных нейтронов по энергиям. Стадия замедления на самом деле состоит из двух этапов. Первый этап – до уровня энергии медленных нейтронов ( $\sim 1$  эВ), второй, в интервале от  $1$  эВ до  $0.025$ , когда происходит постепенный переход замедляющихся нейтронов в тепловую область. Этот второй этап, который называется термализацией нейтронов, имеет важное значение и рассматривается отдельно (§ 1.4.4).

Поведение в среде нейтронов с энергией меньше нескольких МэВ определяется двумя типами столкновений с атомными ядрами. Это может быть рассеяние или поглощение. Рассеяние может быть упругим или неупругим. При *неупругом* рассеянии нейтрон передает энергию ядру и оно переходит в возбужденное состояние. При *упругом* рассеянии по определению состояние участников столкновения не меняется, могут измениться только направления скоростей частиц. Однако надо отметить, что принятое в теории столкновений определение упругого процесса, как процесса, в котором энергии частиц сохраняются, имеет место в системе центра масс. В лабораторной системе, в которой и проводится эксперимент, центр масс движется, так как часть его энергии будет передана ядру, которое до столкновения покоилось, а после

пришло в движение. Поглощение сопровождается различными превращениями: радиационным захватом, испусканием заряженных частиц, делением ядра. Для кинетики процесса не имеет значения, какой процесс произошел при столкновении. Имеет значение только то, что при столкновении нейтрон остается в среде или исчезает. Поскольку рано или поздно нейтроны будут поглощены ядрами материала, важно знать среднее время жизни нейтронов в замедлителе. Оно определяется соотношением между полным сечением рассеяния и сечением поглощения в конкретном материале. Уменьшением числа нейтронов в результате естественного распада можно пренебречь. Понятно, что качество замедлителя будет тем выше, чем сечение поглощения будет меньше. Хорошими замедлителями являются материалы, состоящие из легких элементов, таких как обычная и тяжелая вода, углеродсодержащие материалы. В них сечение поглощения на три – четыре порядка меньше сечения рассеяния. К тому же в таких замедлителях рассеяние будет главным образом упругим. Причиной этому является то, что у ядер с небольшим массовым числом расстояния между энергетическими уровнями большие и поэтому сечение неупругого рассеяния значительно меньше сечений упругого рассеяния.

При упругом рассеянии на ядре угловое распределение нейтронов с энергией меньше 1 эВ очень близко к изотропному, поэтому в процессе упругого рассеяния нейтрон постоянно меняет направления своего движения на большие углы. А это означает, что распространение нейтрона в среде является случайным блужданием: длина свободного пробега до очередного акта взаимодействия и изменение направления движения – случайные величины, что характерно для диффузии частиц при их распространении в среде.

Детальное описание процессов замедления и диффузии нейтронов не входит в нашу задачу, интересующимся можно рекомендовать специальные книги [Кишин, 1967; Галанин, 1984; Гуревич и Протасов, 1997]. Мы ограничимся рассмотрением базовых уравнений общего характера [Бунаков и Краснов, 2014; Стогов, 2008], с помощью которых при желании можно проводить конкретные расчеты для описания распространения нейтронов, в том числе и обсуждаемых выше процессов. Некоторые детали процесса замедления нейтронов и общие принципы устройства замедлителей на стационарных и импульсных источниках нейтронов изложены в Главе 10.

#### 1.4.2. Нейтронное поле

Введем некоторые определения для описания поля нейтронов как материальных частиц. Представление нейтрона в виде точечной частицы означает, что задается его положение в пространстве  $\vec{r}$ , скорость  $v$ , направление движения, определяемое единичным вектором  $\Omega$ , совпадающим с направлением движения в момент времени  $t$ . Под *нейтронным полем* понимают совокупность свободных нейтронов в пространстве с заданными параметрами и с определенным распределением по энергии. Это поле характеризуется



шестимерной плотностью в фазовом пространстве  $n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$ . Тогда  $n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \Delta V \Delta E \Delta \Omega$  есть число нейтронов в элементе объема  $dV$  вокруг координаты  $\vec{r}$  в момент времени  $t$  с направлением движения в телесном угле  $\vec{\Omega}$  и энергией  $E$  в энергетическом интервале  $dE$ . Величину  $n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$  называют *дифференциальной плотностью нейтронов*.

Определим *векторную плотность нейтронов* соотношением:

$$n(\vec{r}, \vec{\Omega}, t) = \int_0^{\infty} n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) dE. \quad (1.4.1)$$

Проинтегрировав векторную плотность по всем возможным направлениям движения нейтронов, получим *плотность нейтронов* в точке  $\vec{r}$ :

$$n(\vec{r}, t) = \int_{4\pi} n(\vec{r}, \vec{\Omega}, t) d\Omega. \quad (1.4.2)$$

Нейтронные поля в пучках и в условиях переноса обычно характеризуют потоком нейтронов. Введем *дифференциальный поток нейтронов*:

$$F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) = n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)v, \quad (1.4.3)$$

где  $v$  – скорость нейтрона,  $v = |\vec{v}|$ .

Эта величина представляет собой число нейтронов в точке  $\vec{r}$  с энергией в интервале  $(E, E + dE)$ , движущихся в направлении  $\vec{\Omega}$  в элементе телесного угла  $d\Omega$ , которые пересекают за 1с поверхность площадью  $1 \text{ см}^2$ , перпендикулярную направлению  $\vec{\Omega}$  (рис.1.4.1).

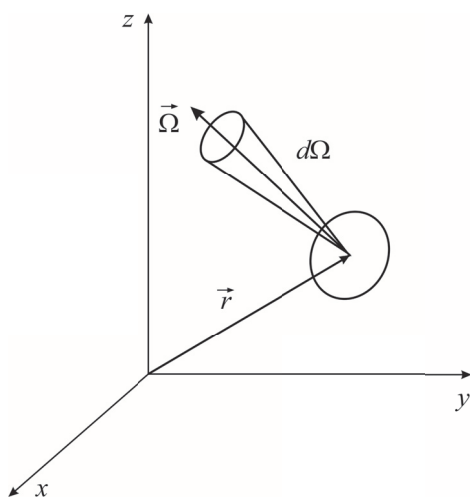


Рис. 1.4.1. К определению плотности потока нейтронов

Размерность величины  $F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) : \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{стер}^{-1} \cdot \text{эВ}^{-1}$ . Эту величину в ускорительной технике называют *яркостью источника (brillians)*. В последнее время ее начали использовать и при характеристике импульсных источников нейтронов.

Определим *векторный поток нейтронов*:

$$F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, t) = \int F(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) dE, \quad (1.4.4)$$

Эта величина представляет собой число нейтронов в точке  $\vec{r}$  в единице телесного угла, которые пересекают за 1 с поверхность площадью  $1 \text{ см}^2$ , перпендикулярную направлению  $\vec{\Omega}$  в телесном угле  $d\Omega$ . Размерность этой величины  $\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{стер}^{-1}$ . В ускорительной технике эта величина называется *светимостью (brightness)*.

Теперь можем определить *полный интегральный поток* в точке  $\vec{r}$  и в момент времени  $t$ :

$$\Phi_n(\vec{r}, t) = \int_{4\pi} F(\vec{r}, \vec{\Omega}) d\Omega = n(\vec{r}, t) \vec{v}. \quad (1.4.5)$$

Здесь  $\vec{v}$  – усредненная по энергетическому спектру скорость нейтрона. Размерность полного интегрального потока (1.4.5)  $\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ . Полный интегральный поток (плотность потока) – основная величина, используемая при описании нейтронных полей. Его еще называют *скалярным (в  $4\pi$ ) потоком*. В изотропном нейтронном поле все направления движения равновероятны, поэтому число нейтронов, пересекающих за 1 с произвольно ориентированную около точки  $\mathbf{r}$  площадку в  $1 \text{ см}^2$  равно  $\Phi_n(\vec{r})/2$  (*направленный или векторный (в  $2\pi$ ) поток*).

Рассмотрим элемент поверхности  $dS$ , ориентацию которого в пространстве задает вектор  $\vec{k}$ , перпендикулярный этой поверхности. Если  $\vec{v}$  есть скорость нейтронов, тогда величина  $\vec{k} dS \vec{v} n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$  – число нейтронов, пересекающих элемент поверхности в единичном телесном угле на единичный интервал энергии в единицу времени. Суммарное число нейтронов  $N$ , пересекающих элемент поверхности  $dS$ , найдем из соотношения

$$N = \vec{k} dS = \int_{4\pi} \vec{v} n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) d\Omega, \quad (1.4.6)$$

Интеграл в выражении (1.4.6) называют *плотностью тока нейтронов*:

$$\vec{J}_n(\vec{r}, E, t) = \int_{4\pi} \vec{v} n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) d\Omega = v \int_{4\pi} \vec{\Omega} n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) d\Omega, \quad (1.4.7)$$

Используя определение (1.4.3), можно записать выражение для плотности тока нейтронов в виде

$$\vec{J}_n(\vec{r}, E, t) = \int_{4\pi} \vec{\Omega} F(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) d\Omega, \quad (1.4.8)$$

Плотность тока – векторная величина, имеющая направление и амплитуду, которую обычно и называют *током*. Ток выражает скорость потока нейтронов на единицу площади в направлении  $\vec{J}$ . Часто путают понятия тока и плотности тока. Например, электрический ток в проводнике есть полный поток заряда через сечение провода, а называется током. Путаница возникает и с понятием потока из-за одинаковой размерности ( $\text{н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ ). Действительно, в некоторых случаях, например, в случае ненаправленных пучков, ток совпадает с потоком. Надо иметь в виду, что когда говорят о токе как о скаляре, то направление вектора подразумевается. Наконец, еще раз отметим возможное одновременное использование терминов «полный ток через элемент поверхности» и «поток».

В изотропном нейтронном поле ток равен нулю. В ненаправленном пучке в направлении  $\vec{\Omega}_0$  будем иметь:

$$n(\vec{r}, E, \Omega, t) = \delta^{(2)}(\vec{\Omega} - \vec{\Omega}_0) n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}_0, t),$$

где  $\delta^{(2)}(\vec{\Omega} - \vec{\Omega}_0)$  – двумерная дельта функция Дирака. В этом случае ток совпадает с потоком.

Введем еще одну полезную характеристику: *флюенс нейтронов*  $\Phi_v$ , определяемый как отношение числа нейтронов  $dN_n$ , проникших в объем элементарной сферы, к площади центрального поперечного сечения этой сферы  $dS$ :  $\Phi_v = \frac{dN_n}{dS} [\text{см}^{-2}]$ .

### 1.4.3. Уравнение переноса нейтронов

Базовым уравнением в теории распространения нейтронов – частиц является уравнение Больцмана. Это интегро-дифференциальное уравнение, линейное относительно распределения плотности нейтронов. Уравнение Больцмана и различные его упрощенные варианты позволяют описывать практически все ситуации, связанные с эволюцией нейтронных полей. Соответствующая теория называется *теорией транспорта* или распространения нейтронов.

Рассмотрим баланс числа нейтронов, содержащихся в элементе объема  $dV$ . Это число может изменяться вследствие следующих процессов [Бунаков и Краснов, 2014]:

- диффузия нейтронов из объема  $dV$ , которая описывается выражением:

$$\text{div} \left[ \vec{\Omega} F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \right] dV d\Omega dE = \vec{\Omega} \cdot \text{grad} \left[ F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \right] dV d\Omega dE ;$$

- генерация нейтронов источниками с плотностью  $S(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$ ;
- уменьшение числа нейтронов за счет процессов поглощения и

рассеяния, сечения которых составляют  $\sum_a, \sum_s$ . Полное сечение есть

$$\text{сумма } \sum_t = \sum_a + \sum_s,$$

$$\sum_t F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) dV d\Omega dE;$$

- увеличение числа нейтронов в объеме  $dV$  за счет рассеяния:

$$\int \int_{4\pi} \sum_s (\vec{\Omega}_0 \rightarrow \vec{\Omega}, E_0 \rightarrow E) F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}_0, E_0, t) d\Omega_0 dE_0 d\Omega dE dV.$$

Здесь

$$\sum_s (\vec{\Omega}_0 \rightarrow \vec{\Omega}, E_0 \rightarrow E) d\Omega dE -$$

есть сечение процесса, в котором нейтрон с энергией  $E$  с направлением скорости  $\vec{\Omega}_0$  рассеивается в элемент телесного угла  $d\Omega$  около направления  $\vec{\Omega}$  и изменяет свою энергию от  $E_0$  до  $E$ .

Сумма всех этих вкладов должна равняться скорости изменения дифференциальной плотности:

$$\frac{\partial n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)}{\partial t} = \frac{1}{v} \frac{\partial F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)}{\partial t} = -\vec{\Omega} \text{grad} F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) - \sum_t F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) +$$

$$+ \int \int_{4\pi} \sum_s (\vec{\Omega}_0 \rightarrow \vec{\Omega}, E_0 \rightarrow E) F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}_0, E_0, t) d\Omega_0 dE_0 + S(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \quad (1.4.9)$$

Получили интегро-дифференциальное уравнение, содержащее семь независимых переменных: три пространственные координаты  $\vec{r}$ ; две переменные  $v, \varphi$ , определяющие направление  $\vec{\Omega}$ ; энергию  $E$  и время  $t$ . Это *уравнение переноса* по форме совпадает с уравнением Больцмана.

Решение этого уравнения в таком виде, как оно получено в аналитическом виде, невозможно. Обычно получают решение для некоторого частного случая, используя упрощающие приближения. Например, для стационарного случая и отсутствия энергетической зависимости сечений уравнение приобретает вид

$$-\vec{\Omega} \text{grad} F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}) + \sum_t F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}) + \int_{4\pi} \sum_s (\vec{\Omega}_0 \rightarrow \vec{\Omega}) F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}_0) d\Omega_0 + S(\vec{r}, \vec{\Omega}) = 0 \quad (1.4.10)$$

Другой важный случай соответствует отсутствию временной и пространственной зависимости. Для получения уравнения переноса в этом случае следует произвести интегрирование уравнения (1.4.9) по углам. Учтем, что

$$\int_{4\pi} \vec{\Omega} \text{grad} F_n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) d\Omega = \text{grad} F_n(E) \int_{4\pi} \vec{\Omega} d\Omega = 0.$$

Для этого приближения  $\Phi_n(E) = \int_{4\pi} F_n(\vec{r}, \vec{\Omega}, E) d^3\vec{r}$ . Теперь уравнение

(1.4.9) принимает вид

$$\left(\sum_a(E) + \sum_s(E)\right) \Phi_n(E) = \int_0^\infty \sum_s(E_0 \rightarrow E) \Phi_n(E_0) dE_0 + S(E). \quad (1.4.11)$$

Уравнение (1.4.11) описывает замедление нейтронов в бесконечной среде с равномерно распределенными источниками.

Поясним обозначения в (1.4.11).  $\sum_a(E)$  – макроскопическое сечение поглощения нейтронов с энергией  $E$ ;  $\sum_s(E_0 \rightarrow E)$  – макроскопическое сечение рассеяния, определяющее вероятность того, что нейтрон с начальной энергией  $E_0$  после столкновения с ядром будет иметь энергию  $E$ . При исследовании процесса замедления используются, как правило, экспериментальные данные о сечении  $\sum_s(E_0 \rightarrow E)$ , так как для реальных замедлителей вычислить эту величину не удастся даже в простейших случаях.

Вероятность обратного перехода от энергии  $E$  к энергии  $E_0$  определяется сечением  $\sum_s(E \rightarrow E_0)$ . В области энергий замедления энергия нейтрона, рассеивающегося на атомном ядре, может как увеличиться, так и уменьшиться.

Число нейтронов в  $1 \text{ см}^3$  среды, которые каждую секунду попадают в область энергий  $E$  вследствие рассеяния, определяется выражением

$$\int_0^\infty \sum_s(E \rightarrow E_0) \Phi(E_0) dE_0. \quad (1.4.12)$$

Число нейтронов, уходящих из области энергии  $E$  вследствие процессов поглощения и рассеяния, равно

$$\sum_s(E) \Phi(E) + \sum_a(E) \Phi(E), \quad (1.4.13)$$

где  $\sum_s(E)$  – полное сечение рассеяния:

$$\sum_s(E) = \int_0^\infty \sum_s(E_0 \rightarrow E) dE_0. \quad (1.4.14)$$

Первое слагаемое в выражении (1.4.13) – полное сечение рассеяния  $\sum_s(E)$ , в том смысле, что нейтрон, изменяя энергию  $E$  в результате столкновения с ядром, может попасть в любую точку энергетической шкалы.

#### 1.4.4. Термализация нейтронов

Изучение термализации – одна из наиболее сложных задач нейтронной физики, так как процесс рассеяния медленных нейтронов твердыми или жидкими замедлителями сильно зависит от тепловых колебаний атомов замедлителя, характера их химических связей и различных когерентных явлений, возникающих при взаимодействии медленных нейтронов с молекулами жидкости или кристаллами в твердом теле.

Основная задача при рассмотрении термализации – это вычисление энергетического спектра нейтронов. Рассмотрим бесконечную слабопоглощающую среду в стационарном режиме.

Перепишем (1.4.11) в виде

$$\sum_a(E)\Phi(E)=L'\Phi(E), \quad (1.4.15)$$

где  $L' = \int_0^\infty \sum_s(E \rightarrow E_0) \Phi(E_0) dE_0 + \sum_s(E) \Phi(E)$  называется *оператором*

*термализации*. Оператор термализации  $L'$  определяет разность между числом нейтронов, попавших в область энергий  $E$  и вышедших из этой области в процессе рассеяния. В случае термодинамического равновесия эта разность равна нулю, а энергетический спектр термализующихся нейтронов – максвелловский  $M(E)$ .

Можно написать следующее равенство:

$$L'M(E) = 0, \quad (1.4.16)$$

Соотношения (1.4.15) и (1.4.16) совпадают друг с другом, если в (1.4.15) допустить, что  $\sum_a(E) = 0$ . Следовательно, истинное термодинамическое равновесие, т.е. состояние, при котором спектр нейтронов описывается максвелловским распределением, может установиться только в бесконечной поглощающей среде.

В реальных средах  $\sum_a(E) \neq 0$ . Для определения спектра нейтронов решается уравнение (1.4.15), как правило, методами численного интегрирования с использованием экспериментальных данных о сечении рассеяния  $\sum_s(E_0 \rightarrow E)$ . Использование методов численного интегрирования позволяет рассчитать энергетические спектры термализующихся нейтронов в средах, для которых зависимости  $\sum_a(E)$  и  $\sum_s(E_0 \rightarrow E)$  имеют сложный характер. Недостаток численных методов заключается в том, что теряется физическая «наглядность», которая позволяет установить связь между видом энергетического спектра термализующихся нейтронов и видом функций  $\sum_a(E)$  и  $\sum_s(E_0 \rightarrow E)$ . Поэтому развиты полуэмпирические методы описания энергетической зависимости полей термализованных нейтронов. Один из таких методов – метод эффективной температуры нейтронного газа. Плотность потока нейтронов в тепловой и надтепловой областях может быть представлена в виде суммы максвелловского (первое слагаемое) и фермиевского (второе слагаемое) потоков

$$\Phi(E) = \Phi_t M(E) + \frac{\Phi_{epi}}{E}, \quad (1.4.17)$$

где  $\Phi_t$  и  $\Phi_{epi}$  – полные плотности потока тепловых и надтепловых нейтронов. Для учета процесса термализации выражение (1.4.17) записывается в несколько другом виде:

$$\Phi(E) = \Phi_t M(E) + \Phi_{epi} \frac{\Delta(E/E_t)}{E}, \quad (1.4.18)$$

где  $\Delta\left(\frac{E}{E_t}\right)$  – функция переходной области;  $E_t = kT_{\text{эфф.}}$  – наиболее вероятное значение энергии нейтронов при температуре нейтронного газа, равной  $T_{\text{эфф.}}$ .

Функцией переходной области учитывается постепенность перехода замедляющихся нейтронов в тепловые и описывается энергетический спектр нейтронов в области энергий, в которой энергетические спектры Ферми и Максвелла перекрываются (при  $E \approx 0,1$  эВ).

Есть разные аналитические зависимости для функции переходной области, одна из которых

$$\Delta\left(\frac{E}{E_t}\right) = \frac{1}{1 + \left(4,95 \frac{E_t}{E}\right)^7}. \quad (1.4.19)$$

Температура замедлителя и температура нейтронного газа не совпадают, несмотря на то, что изучается спектр тепловых нейтронов. Это обусловлено тем, что при наличии поглощения, которое возрастает с уменьшением энергии нейтронов в тепловой области, спектр тепловых нейтронов «ужесточается», так как нейтроны малых энергий ( $E < E_t$ ) поглощаются сильнее, чем нейтроны с энергиями  $E > E_t$ .

Несмотря на то, что спектр тепловых нейтронов становится жестче и отклоняется от максвелловской формы, предполагается, что спектр нейтронов может быть описан максвелловским распределением с температурой нейтронного газа большей, чем температура замедлителя:  $T_{\text{эфф.}} > T_0$ . Температура  $T_{\text{эфф.}}$  называется *эффективной температурой*. Для расчета эффективной температуры есть много формул. Наибольшее распространение получило следующее выражение:

$$T_{\text{эфф.}} = T_0 \left[ 1 + 1,4 \frac{\sum_a (kT_0)}{\xi \sum_s} \right], \quad (1.4.20)$$

в котором предполагается, что  $\xi \sum_s$  – постоянная величина (замедляющая способность среды). Значение  $\sum_s$  берется из эксперимента при  $E = 1$  эВ, а  $\sum_a$  – при  $E = kT_0$ .

### Рекомендуемая литература к главе 1

Александров Ю.А. (1992), *Фундаментальные свойства нейтрона*, М.: Энергоатомиздат.

Бунаков В.Е., Краснов Л.В. (2014), *Нейтронная физика*, С.-Петербург: СПбГУ.

Игнатович В.К. (2006), *Физика ультрахолодных нейтронов*, М.: Физматлит.

Стогов Ю.В. (2008), *Основы нейтронной физики*, Учебное пособие, М.: МИФИ.

## ГЛАВА 2. ЭЛЕМЕНТАРНАЯ ТЕОРИЯ РАССЕЙНИЯ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ

В данной главе будет изложена феноменологическая теория рассеяния медленных нейтронов, основанная на борновском приближении в теории возмущений с взаимодействием в виде псевдопотенциала Ферми. Она является основой теории взаимодействия медленных нейтронов с веществом, используемой обычно при интерпретации экспериментальных данных. В этом смысле ее можно назвать элементарной (базовой) теорией. Различные ее аспекты отражены во многих монографиях и учебных пособиях по рассеянию нейтронов, например, [Гуревич и Тарасов, 1965; Squires, 2012; Lovesey, 1984; Furrer et al., 2009]. Здесь мы, следуя в основном статье [Fermi, 1936] и книгам [Турчин, 1963; Carpenter and Loong, 2015], изложим общую схему и принципы, особенно не вдаваясь в математические детали.

### § 2.1. Упругое рассеяние на потенциале

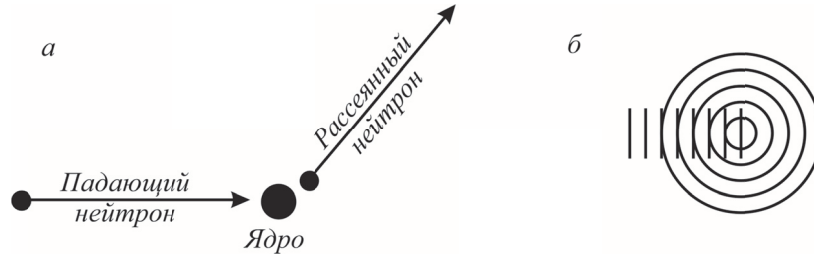
Рассмотрим рассеяние нейтрона на одном изолированном ядре, фиксированном в пространстве. Это означает, что рассеяние *абсолютно упругое*, при котором нейтрон не может передать энергию ядру (ср. § 1.4). Задача двух тел, которые взаимодействуют только друг с другом – это один из примеров рассеяния частиц силовым полем. Эта задача решается стандартными методами квантовой теории столкновений (например, [Ландау и Лифшиц, 2001, т. 3; Балашов, 2012]). Координату нейтрона обозначим через  $\vec{r}$ . Силы взаимодействия между медленным нейтроном и ядром, закрепленным в начале координат, будем считать статическими и центральными. Это означает, что потенциал взаимодействия  $V(r)$  зависит только от расстояния  $r$  между нейтроном и ядром и от взаимной ориентации спинов нейтронов и ядра. Здесь мы будем пренебрегать наличием спинов и у нейтрона и у ядра. Тогда волновая функция нейтрона будет функцией  $\vec{r}$ :  $\psi = \psi(\vec{r})$ . Чтобы определить судьбу нейтрона, нужно решить уравнение Шредингера (у.Ш.):

$$\Delta\psi(\vec{r}) + \frac{2m}{\hbar^2} [E - V(r)] \psi(\vec{r}) = 0. \quad (2.1.1)$$

По условиям задачи (см. § 1.3) потенциал  $V(r)$ , представляющий поле ядра, является существенно короткодействующим: имеется такое расстояние  $r_0$ , что  $V(r) = 0$  при  $r > r_0$ . Зная потенциал  $V(r)$ , можно в принципе решить это у.Ш., сшивая решение в области  $r \leq r_0$  с решением в области  $r \geq r_0$ .

Согласно концепции де Бройля в квантово-механическом подходе к рассеянию, падающий нейтрон представлен в виде плоской волны бесконечной протяженности (см. примечание на стр. 20).





**Рис. 2.1.1.** а) Схема столкновения нейтрона с ядром в корпускулярном представлении; б) схема столкновения в волновом представлении [Ферми, 1952].

При движении из бесконечности в положительном направлении оси  $z$  (рис. 2.1.1) соответствующая волновая функция имеет вид

$$\psi_0 = \exp(ik_0z), \quad (2.1.2)$$

где  $k_0 = p_0/\hbar = \sqrt{2mE_0}/\hbar$  – волновое число падающего нейтрона,  $m_n$  – масса,  $E_0$  – энергия нейтрона<sup>\*)</sup>.

Плотность потока частиц через площадь  $1 \text{ см}^2$  в  $1 \text{ с}$  (вектор плотности тока вероятности [Блохинцев, 2015, § 29], ср. § 1.4):

$$\vec{J}_n = \frac{i\hbar}{2m} (\psi \nabla \psi^* - \psi^* \nabla \psi) \quad (2.1.3)$$

для плоских волн (2.1.2) равна:

$$|\vec{J}_{\text{пад.}}| = \left| \frac{i\hbar}{2m_n} (-2i\vec{k}) \vec{e}_z \right| = \frac{\hbar k}{m} = \frac{p}{m} = v, \quad (2.1.4)$$

то есть просто скорости частиц ( $\vec{e}_z$  – единичный вектор).

Запись волновой функции в виде (2.1.2) соответствует нормировке, при которой плотность потока в волне равна скорости частиц  $v$ .

Теперь посмотрим, какой вид будет у волновой функции после рассеяния на большом расстоянии от ядра, где потенциал  $V(r)$  уже не действует.

Благодаря центральному характеру сил момент количества движения нейтрона относительно начала координат является интегралом движения, и волновая функция  $\psi(\vec{r})$  может быть представлена в виде разложения по собственным функциям момента количества движения. Силы взаимодействия между нейтроном и ядром короткодействующие, т.е. существует такое  $r_0$ , что при  $r > r_0$  потенциал  $V(r)$  можно считать равным нулю. В этом случае, если длина волны падающих частиц, деленная на  $2\pi$ ,  $\lambda = \frac{\lambda}{2\pi} = k^{-1}$ , много больше размеров

<sup>\*)</sup> При упругом рассеянии не происходит передачи энергии, поэтому мы в дальнейшем перейдем к обозначениям  $|\vec{k}_0| = |\vec{k}_1| = k$ ,  $p_0 = p_1 = p$ .

области взаимодействия  $r_0$ , рассеиваются только частицы с моментом количества движения, равным нулю.

Напомним квазиклассическую интерпретацию этого утверждения. В классической механике столкновения двух частиц полностью определяются их скоростями и прицельным расстоянием – расстоянием, на котором они прошли бы друг мимо друга при отсутствии взаимодействия. Момент количества движения частицы равен произведению ее импульса  $p$  на прицельное расстояние  $b$ :  $M = pb$ . Теперь момент  $M$  квантуется, и его возможные значения есть:

$M_l = \sqrt{l(l+1)}\hbar$ ,  $l = 0, 1, 2 \dots$  Следовательно, и прицельные расстояния должны в некотором смысле квантоваться, точнее говоря, каждому значению  $l$  соответствует некоторое среднее эффективное прицельное расстояние, т.е. наименьшее расстояние, на которое подходит к силовому центру частица, имеющая момент  $M_l$ . Таким образом,

$$b_l = \frac{M_l}{p} = \frac{\sqrt{l(l+1)}\hbar}{p} = \sqrt{l(l+1)}\lambda, \quad (2.1.5)$$

так как  $\hbar/p = k^{-1} = \lambda$ . Для частиц с  $l = 0$  (соответствующая компонента волновой функции называется  $s$ -волной) эффективное прицельное расстояние  $b = 0$ . Для частиц с  $l = 1$  ( $p$ -волна) прицельное расстояние  $b_l \geq \sqrt{2}\lambda$ . Поэтому, если  $\lambda \gg r_0$ , все частицы с  $l > 0$  минуют область взаимодействия с силовым центром и не рассеиваются: наличие ядра никак не сказывается на частицах, проходящих мимо ядра на « $p$ -расстояниях».

Нейтроны с энергией  $E < 1\text{эВ}$  имеют длину волны  $\lambda > 0.1$  нм, что гораздо больше, чем радиусы самых тяжелых ядер. Таким образом, при рассеянии медленных нейтронов рассеивается только  $s$ -волна; остальные компоненты  $\psi$ -функции остаются неизменными. Следовательно, рассеянная волна описывается функцией, зависящей только от расстояния  $r$ .

В задаче о движении в центральном поле [Ландау и Лифшиц, 2001, т. 3, § 132] радиальная часть волновой функции в у. Ш. для  $s$ -волны имеет вид

$$R_{k0}(r) \cong \text{const} \frac{\sin(kr)}{kr} = \frac{1}{2ikr} (\exp(ikr) - \exp(-ikr)). \quad (2.1.6)$$

Синусоида описывает стоячую волну, которая является суперпозицией двух бегущих. Для первой из них плотность потока определяется выражением:

$$\vec{J}_{\text{расс.}} = \frac{i\hbar}{2m} \left( \frac{\exp(ikr)}{r} \nabla \frac{\exp(-ikr)}{r} - \frac{\exp(-ikr)}{r} \nabla \frac{\exp(ikr)}{r} \right). \quad (2.1.7)$$

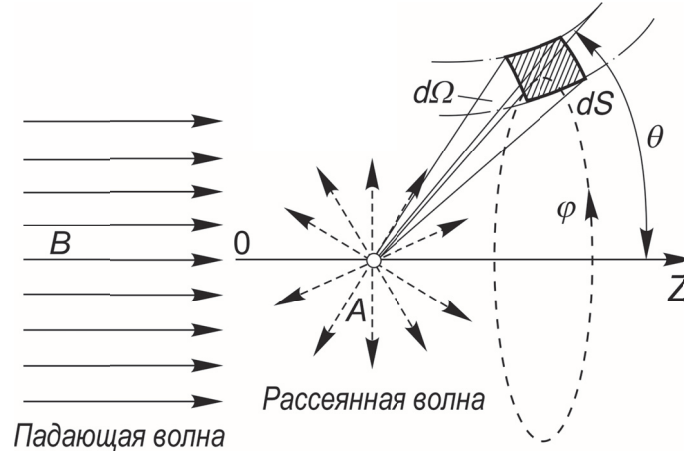
В реальной постановке эксперимента детектор находится на большом расстоянии от мишени, в масштабе ядерных длин можно сказать, что на бесконечности. Тогда в пределе  $r \rightarrow \infty$  получим из (2.1.7)

$$\vec{J}_{\text{расс.}} = \frac{\hbar k}{mr^2} \frac{\vec{r}}{r} = \frac{v\vec{r}}{r^2 r}, \quad |\vec{J}_{\text{расс.}}| = \frac{v}{r^2}. \quad (2.1.8)$$

Плотность потока вероятности направлена наружу. Таким образом, волновая

$$\text{функция} \quad \psi_1(r) = \frac{1}{r} \exp(ikr) \quad (2.1.9)$$

представляет собой расходящуюся сферическую волну. Схематически этот процесс изображен на рис. 2.1.2.



**Рис. 2.1.2.** Рассеяние падающей волны  $B$  ядром  $A$  возбуждает рассеянную сферическую волну, фиксированную в точке  $A$ . Кинематика рассеяния в интервал телесного угла  $d\Omega = \sin\theta d\theta d\varphi$ , где  $\theta$  – полярный угол рассеяния,  $\varphi$  – азимутальный угол в сферической системе координат, если ось  $z$  направлена по волновому вектору  $\vec{k}$  [Блохинцев, 2015].

Вторая волна  $r^{-1} \exp(-ikr)$  в (2.1.5) соответствует сходящейся к центру рассеяния (точка  $A$  на рис. 2.1.2) и описывает процессы неупругого рассеяния, которые мы рассмотрим чуть ниже.

Итак, асимптотика волновой функции имеет вид

$$\psi(\vec{r}) \Big|_{r \rightarrow \infty} = \exp(i\vec{k}\vec{r}) + \frac{f}{r} \exp(ikr). \quad (2.1.10)$$

Первое слагаемое описывает пучок падающих из бесконечности волн, второе слагаемое – рассеявшиеся нейтроны. Коэффициент при сферической расходящейся волне  $f$  называется *амплитудой рассеяния*, которая имеет размерность длины. Для  $s$ -волны рассеяние изотропно, поэтому в (2.1.10) нет зависимости от угла рассеяния  $\theta$ . Вследствие азимутальной симметрии отсутствует и зависимость от  $\varphi$ . Амплитуда рассеяния дает вероятность рассеяния.

Выражение (2.1.8) играет роль граничных условий для у.Ш. (2.1.1), соответствующих задаче упругого рассеяния медленного нейтрона ( $s$ -волны).

Через амплитуду рассеяния легко выражаются сечения рассеяния и поглощения нейтронов. Построим сферу с центром в ядре и любым радиусом

$r > r_0$ . Чтобы получить полный поток рассеянных нейтронов, проходящих через эту сферу надо выражение (2.1.8) умножить на  $|f|^2$  и на площадь сечения сферы  $4\pi r^2$ . *Сечение рассеяния* – отношение потока рассеянных нейтронов к падающему потоку получаем в виде:

$$\sigma_s = 4\pi |f|^2. \quad (2.1.11)$$

Заметим, что это выражение дает сечение рассеяния в 4 раза бóльшее сечения рассеяния медленных частиц в классическом приближении, что является результатом чисто квантового эффекта интерференции рассеянного и нерассеянного пучков. В результате число рассеянных частиц может оказаться в 4 раза бóльшим числа падающих частиц в потоке.

Добавляя к (2.1.6) рассеянную волну из (2.1.10), находим  $s$ -компоненту волновой функции

$$\psi(r) \Big|_{r>r_0} = \frac{i}{2k} \frac{\exp(-ikr)}{r} + \left( f - \frac{i}{2k} \right) \frac{\exp(ikr)}{r}. \quad (2.1.12)$$

Здесь первый член представляет сходящуюся, второй – расходящуюся  $s$ -волну. Вычисляя потоки сходящейся и расходящейся волн через произвольную сферу точно так же, как и в предыдущем случае, вычитая второй из первого и деля на поток падающих нейтронов, получаем *сечение поглощения*

$$\sigma_a = 4\pi \left\{ \left| \frac{i}{2k} \right|^2 - \left| f - \frac{i}{2k} \right|^2 \right\} = \frac{4\pi}{k} \operatorname{Im} f - 4\pi |f|^2, \quad (2.1.13)$$

где  $\operatorname{Im} f$  – мнимая часть амплитуды рассеяния  $f$ . Складывая (2.1.13) и (2.1.11), получаем, что полное сечение рассеяния

$$\sigma_t = \sigma_s + \sigma_a = \frac{4\pi}{k} \operatorname{Im} f, \quad (2.1.14)$$

Выражение (2.1.14) называется *оптической теоремой для рассеяния*. Отсюда видно, что амплитуда рассеяния всегда комплексна и ее мнимая часть пропорциональна полному сечению взаимодействия нейтрона с ядром.

Выражение (2.1.14) является частной формулировкой оптической теоремы, поскольку мы рассмотрели здесь изотропное рассеяние, которое реализуется при упругом рассеянии  $s$ -волны. В этом случае амплитуда рассеяния не зависит от угла рассеяния  $\theta$ . В общем случае, когда амплитуда рассеяния зависит от  $\theta$  (§ 2.2) оптическая теорема утверждает [Ландау и Лифшиц, 2001, т.3, § 142]:

$$\operatorname{Im} f(\theta = 0) = \frac{k}{4\pi} \sigma_t, \quad (2.1.14a)$$

Здесь  $f(\theta = 0)$  – амплитуда упругого рассеяния на нулевой угол (рассеяние вперед), а полное сечение рассеяния  $\sigma_t$  включает в себя как упругое, так и неупругое рассеяние (в частности, в виде поглощения).

Эта весьма важная теорема, следующая из закона сохранения числа частиц (эквивалентно, из условия унитарности), была установлена Е.Финбергом

(E.Feenberg) в 1932 г. [Ньютон 1969]. Дело в том, что в эксперименте невозможно измерить сечение упругого рассеяния на нулевой угол (мешают нейтроны падающего пучка). Благодаря (2.1.14а), можно найти «оптическую» точку и аппроксимировать сечение.

Что можно сказать о соотношении между действительной и мнимой частью амплитуды рассеяния? Рассмотрим сначала случай, когда поглощение отсутствует. Тогда  $\sigma_t = \sigma_s$ , и из (2.1.14) находим

$$\operatorname{Im} f = \frac{\sigma_s}{4\pi} k \rightarrow 0, \quad (2.1.15)$$

когда  $k \rightarrow 0$  ( $E \rightarrow 0$ ). Следовательно, в этом случае амплитуда рассеяния становится в пределе действительной величиной.

Если присутствует поглощение нейтронов, то  $\lim_{k \rightarrow 0} f$  – величина комплексная и, как видно из (2.1.13) и (2.1.14),  $\sigma_t$  и  $\sigma_a$  при  $k \rightarrow 0$  возрастают по закону  $1/v$ . Зная  $\sigma_a$  и  $\sigma_s$ , легко подсчитать предельное при  $k \rightarrow 0$  значение отношения  $\operatorname{Im} f / |f|$ . Для водорода, например, это отношение имеет порядок величины  $10^{-5}$ . Даже для такого сильного поглотителя, как бор,  $\operatorname{Im} f / |f| \approx 0,04$ , т.е. гораздо меньше единицы.

Теперь оценим  $\operatorname{Im} f$  в случае больших  $k$ , когда  $\sigma_t$  определяется в основном сечением рассеяния  $\sigma_s$ . Из (2.1.14) и (2.1.9) находим, пренебрегая  $\sigma_a$  по сравнению с  $\sigma_s$ ,

$$\frac{\operatorname{Im} f}{|f|} = k |f| = \frac{|f|}{\lambda}, \quad (2.1.16)$$

что много меньше единицы, ибо  $f$  по порядку величины равно размерам ядра.

Итак, во всем рассматриваемом интервале энергий  $\operatorname{Im} f \ll |f|$ , поэтому если нас интересует только рассеяние, но не поглощение, амплитуду рассеяния  $f$  можно считать действительной величиной.

## § 2.2. Длина рассеяния

В квантовой механике, в отличие от классической, при движении частицы с определенной скоростью понятие траектории, а с ней и прицельного параметра, теряет свой смысл. Другими словами, если импульс нейтрона точно известен, то согласно соотношению неопределенности Гейзенберга, его положение совершенно не определено. Поэтому в задаче рассеяния требуется вычислить вероятность рассеяния на тот или иной угол.

Ферми ввел понятие длины рассеяния при рассмотрении атомных систем и затем использовал при описании движения нейтронов в водородсодержащих веществах. Рассмотрим, следуя Ферми [Fermi, 1946], поведение волновой

функции нейтрона, рассеянного на потенциале типа прямоугольной ямы (см. § 1.3). Для  $s$ -рассеяния у.Ш. (2.1.1) в сферических координатах имеет вид

$$r\psi'' + 2\psi' + \frac{2m_n}{\hbar^2}(E - V(r))r\psi = 0 \quad (2.2.1)$$

или

$$\frac{d^2}{dr^2}(r\psi) + \frac{2m_n}{\hbar^2}(E - V(r))(r\psi) = 0, \quad (2.2.2)$$

где  $E = \hbar^2 k^2 / 2m_n$ ,  $V(r)$  – потенциал задачи. Введем функцию  $u(r) = r\psi$ . Для нее из (2.2.2) получаем одномерное дифференциальное уравнение

$$u'' + \frac{2m_n}{\hbar^2}(E - V(r))u = 0, \quad (2.2.3)$$

которое должно решаться при заданном потенциале  $V(r)$  при следующих граничных условиях:  $\psi = 0$  на бесконечности и конечна при конечных  $r$ .

Рассмотрим волновую функцию внутри ядра (потенциальной ямы глубиной  $V_0$  и радиусом  $r_0$ , рис. 2.2.1). В пределе длинных волн ( $k \rightarrow 0$ )  $V_0 \gg E$  и энергией  $E$  можно пренебречь. Для оценки можно взять из ядерных данных  $V_0 \approx 20$  МэВ,  $E = E_{\text{тепл.}} = 1/40$  ЭВ. В этом случае получаем решение при  $r < r_0$

$$u(r) = C \sin[K \cdot r], \quad (2.2.4)$$

где  $C$  – произвольная постоянная  $K = \left(\frac{2m_n V_0}{\hbar^2}\right)^{1/2}$  – модуль волнового вектора

внутри ядра. Это решение должно быть «сшито» с кривой вне ядра, функция  $u$  и ее первая производная должны быть непрерывны в точке сшивания  $r = r_0$ .

Функцию  $u(r)$  получим с помощью выражения для волновой функции (2.1.12), умножив его на  $r$  и в пределе  $k \rightarrow 0$ , оставив неисчезающие члены. Получаем

$$u(r) \Big|_{r>r_0} = r + \lim_{k \rightarrow 0} f(k). \quad (2.2.5)$$

Видим, что в пределе  $u(r)$  превращается в прямую (рис. 2.2.1а). Продолжая эту прямую до пересечения с осью абсцисс, получим отрезок, длину которого обозначим буквой  $a$ . Согласно (2.2.5)

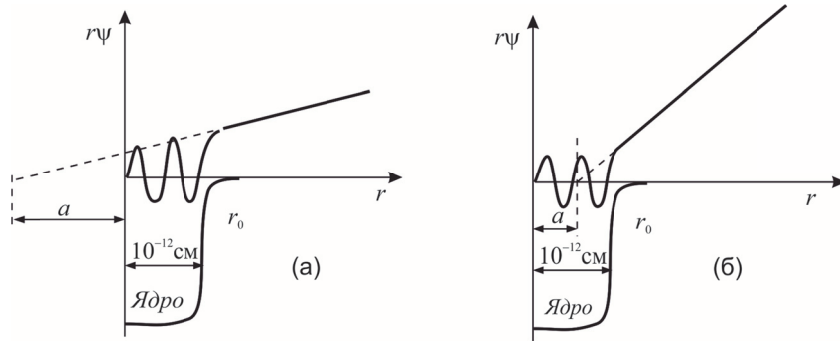
$$a = -\lim_{k \rightarrow 0} f(k). \quad (2.2.6)$$

Определяемая этим выражение постоянная  $a$  получила название «длины рассеяния Ферми».

Наклон прямой, аппроксимирующей функцию  $u(r)$ , может меняться и, как видно из рис. 2.2.1а, точка пересечения с осью  $r$  может стать отрицательной величиной.

Длине рассеяния можно придать следующий смысл. Представим себе, что нейтрон взаимодействует с ядром, как с «твердым шариком» радиусом  $r_0$ , т.е. при

$r > r_0$  взаимодействия нет,  $V(r) = 0$ ; при  $r < r_0$  нейтрон не может проникнуть вглубь шарика,  $V(r) = \infty$ . Тогда волновая функция должна обращаться в нуль в точке  $r = r_0$ . При  $k \rightarrow 0$ , когда имеет место уравнение (2.2.5), эта точка будет единственной точкой, где  $u(r) = 0$ , т.е. длина рассеяния  $a$  равна радиусу твердого шарика  $r_0$ .



**Рис. 2.2.1.** Поведение функции  $r\psi$  внутри и вне ядра при отрицательной (а) и положительной (б) длине рассеяния [Ферми, 1952].

В действительности, конечно, взаимодействие нейтрона с ядром гораздо сложнее, чем с «твердым шариком», и длина рассеяния может быть как положительной, так и отрицательной. Отрицательной она может стать для ядер, которые дают резонансное рассеяние (см. гл. 1 и [Ландау и Лифшиц, 2001, т. 3]). В этом случае амплитуда рассеяния содержит два вклада: от потенциального  $f_{\text{пот.}}$  и от резонансного  $f_{\text{рез.}}$  рассеяния:

$$f = f_{\text{пот.}} + f_{\text{рез.}}(k) = f_{\text{пот.}} + \frac{\Gamma/2}{k[(E - E_0) + i\Gamma/2]}, \quad (2.2.7)$$

где  $E_0$  – энергия резонансного уровня,  $\Gamma$  – его ширина. Для медленных нейтронов их энергия  $E \ll E_0$ , и в большинстве случаев  $\Gamma \ll E_0$ . Поэтому формулу Брейта-Вигнера (2.2.7) с хорошей точностью можно переписать в виде:

$$f = f_{\text{пот.}} - \frac{\Gamma}{2kE_0}. \quad (2.2.8)$$

Кроме этого, как правило  $\Gamma \sim k$ . В перечисленных допущениях выражение (2.2.8) демонстрирует качественную картину возможности изменения знака амплитуды рассеяния (длины рассеяния) медленных нейтронов. Потенциальное и резонансное рассеяние могут интерферировать, что не позволяет определенно различить их вклад.

Так как в большинстве случаев, представляющих интерес, сечение рассеяния в нашем интервале энергий не зависит от энергии, мы будем считать

амплитуду рассеяния равной длине рассеяния со знаком минус, т.е. записывать (2.1.10) в виде

$$\psi(\vec{r}) \Big|_{r>r_0} = \exp(i\vec{k}_0\vec{r}) - a \frac{\exp(ikr)}{r}, \quad (2.2.9)$$

где длина рассеяния  $a$  не зависит от энергии нейтрона. Сечение рассеяния согласно (2.1.11) имеет вид.

$$\sigma = 4\pi a^2, \quad (2.2.10)$$

Как видим, сечение упругого рассеяния медленных нейтронов атомными ядрами, спин которых равен нулю, не зависит от параметров потенциала взаимодействия между нейтроном и ядром, а определяется только одной константой – длиной рассеяния Ферми.

Взаимодействие нейтрона с ядром характеризуют обычно длиной рассеяния  $a$  ( $a$  не амплитудой  $f$ ), так как для большинства ядер она положительна. С другой стороны, основной физический смысл величины  $a$  не в том, что она определяет точку, где  $u(r)$  обращается в нуль, а в том, что она пропорциональна сдвигу фазы рассеянной волны. Рассмотрим этот вопрос подробнее.

В фазовой теории рассеяния падающую волну представляют в виде совокупности парциальных волн, каждая из которых соответствует определенному моменту количества движения  $l$ , т.е. в классическом смысле определенному прицельному параметру, если падающую частицу считать точечной. Процесс рассеяния приводит к изменению характеристик этих парциальных волн. Каждая рассеянная волна, отвечающая данному значению  $l$ , приобретает по отношению к падающей волне определенный *сдвиг фаз*  $\delta_l$  и для каждой из них характерно определенное угловое распределение. Амплитуда рассеяния для сферически-симметричного потенциала дается в виде суммы по  $l$  бесконечного ряда [Ландау и Лифшиц, 2001, т. 3, § 123]:

$$f(\theta, k) = \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) f_l P_l(\cos\theta), \quad (2.2.11)$$

где  $P_l(\cos\theta)$  – полиномы Лежандра  $f_l = \frac{1}{2ik}(\exp(2i\delta_l) - 1)$  – парциальные амплитуды. Сдвиг фаз  $\delta_l$  зависит от потенциала взаимодействия. Если нейтроны взаимодействуют с ядрами только упруго, то  $\delta_l$  – действительные величины. Если нейтроны могут поглощаться ядрами, то  $\delta_l$  – комплексные величины.

Для  $s$ -рассеяния выражение (2.2.11) принимает вид:

$$f_0(\theta, k) \equiv f_0(k) = \frac{1}{2ik}(\exp(2i\delta_0) - 1), \quad (2.2.12)$$

где  $\delta_0$  обозначено сдвиг фазы  $s$ -волны, а сечение рассеяния равно:

$$\sigma = 4\pi |f_0|^2 = 4\pi \frac{\sin^2 \delta_0}{k^2}. \quad (2.2.13)$$



Из (2.2.12), в частности, следует, что если сдвиг фазы  $\delta_0$  мал, то

$$f_0 \cong \frac{\delta_0}{k} \text{ для } |\delta_0| \ll 1. \quad (2.2.14)$$

При предельно малых значениях волнового вектора  $\delta_l \sim k^{2l+1}$ , поэтому в случае  $s$ -рассеяния  $\delta_0(k) \sim k$ . Таким образом, из (2.2.14) следует, что для медленных нейтронов должен существовать конечный предел

$$\lim_{k \rightarrow 0} f_0(k) = -a, \quad (2.2.15)$$

что соответствует (2.2.6).

Физический смысл длины рассеяния можно понять из соотношения (2.2.14), из которого видно, что амплитуда,  $a$ , следовательно, и длина рассеяния представляют собой фазовый сдвиг рассеянной волны, выраженный в единицах длины.

Ферми и Маршалл [Fermi and Marshall, 1947] для определения сдвига фазы  $\delta_0$  выполнили ряд экспериментов по интерференции медленных нейтронов, используя брэгговскую дифракцию на простых кристаллах. Было установлено, что разности фаз между падающей и рассеянной волной весьма близки 0 или 180°. При таком рассеянии либо нет изменения фазы, либо есть изменение, отвечающее почти полному обращению фазы на 180°. Изменения же фаз, резко отличающиеся от указанных двух значений, отвечают сильному поглощению. Разность фаз определяется длиной рассеяния  $a$ , а именно: если  $a$  – вещественна и положительна, то разность фаз равна 180°; комплексные значения  $a$  отвечают промежуточным значениям разности фаз. Эксперименты показали, что за немногим исключением реализуется разность фазы 180°. Это означает, что для большинства ядер длина рассеяния положительна.

В парциальную амплитуду рассеяния  $f_l$  в (2.2.11) входит величина

$$S_l = \exp(2i\delta_l), \quad (2.2.16)$$

называемая *матрицей рассеяния* ( $S$ -матрицей). Соответствующий оператор  $\hat{S}$  по определению преобразует волновую функцию начального состояния в волновую функцию конечного состояния:

$$\psi(\vec{r}) = \hat{S}\psi_0(\vec{r}). \quad (2.2.17)$$

Важное значение  $S$ -матрицы для теории было подчеркнута В.Гейзенбергом. Особое значение  $S$ -матрица имеет в теории рассеяния, где  $S$ -матрица в (2.2.17) преобразует состояние, заданное при  $t = -\infty$  и на бесконечно удаленном от мишени расстоянии в состояние, возникающее при  $t = +\infty$ , и опять на бесконечном (по условиям задания геометрии рассеяния) удалении от мишени. Фаза рассеяния при этом через соотношение (2.2.14) связана с наблюдаемой величиной – длиной рассеяния (сечением рассеяния).

### § 2.3. Псевдопотенциал Ферми

В статье [Fermi, 1936] Ферми, кроме общего анализа диффузии и замедления нейтронов, провел квантово-механическое исследование столкновения медленных нейтронов с протонами в парафине. Был рассмотрен механизм соударений с учетом того, что атомы водорода не являются свободными, а будучи химически связанными, удерживаются в некоторых положениях равновесия упругими силами. В таком и в общем случае системы химически связанных атомов задача рассеяния может решаться по-разному в зависимости от соотношения энергии нейтронов  $E$  и энергии кванта  $w$ , которому отвечает частота упругой связи (коллективного возбуждения) системы. Для иллюстрации возьмем гармонический кристалл, в котором  $w = (f/M)^{1/2}$ , где  $f$  – константа упругости,  $M$  – масса ядра. Относительно просто решаются предельные случаи закрепленного и свободного ядра. В квантовой теории рассеяния – это задача двух тел. В случае закрепленного ядра (случай предельно сильной связи) в лабораторной системе отсчета, в которой оси координат фиксированы в пространстве и одна из частиц первоначально покоится, задача сводится к задаче движения одного тела (нейтрона) в заданном поле сил другого (ядра) – рассеяние на потенциале (§ 2.1). Задача о рассеянии нейтрона на свободном покоящемся ядре (когда  $E$  много больше  $w$ ) решается переходом в систему центра масс нейтрона и ядра. В этом случае задача сводится к предыдущей с приведенной массой нейтрона:

$$m = \frac{m_n \cdot M}{m_n + M}. \quad (2.3.1)$$

где  $m_n$  – собственная масса нейтрона,  $M$  – масса ядра. Поскольку эксперименты проводятся в лабораторной системе отсчета, то при переходе к анализу экспериментов надо результаты перенести снова в лабораторную систему [Ньютон, 1969; Турчин, 1963].

В реальности в мишени (в образце: кристалл, жидкость, молекулы газа) атомы ни жестко закреплены, ни полностью свободны, их относительная свобода будет влиять на процесс рассеяния медленных нейтронов, так как их энергия сравнима с энергией химической связи. Поскольку рассеивающее ядро связано с всей массой мишени (можно сказать с бесконечно большой массой), то теперь система центра масс нейтрон – ядро будет совпадать с лабораторной системой отсчета, что приводит к кинематическому эффекту: увеличению длины рассеяния: см. далее (2.3.19). Нейтрон при столкновении с рассеивающим ядром вступает во взаимодействие со всем коллективом мишени, которая является единой квантово-механической системой, хотя, подчеркнем, акт столкновения происходит с отдельным ядром. При этом нейтрон обменивается энергией не с этим ядром, а с квантом коллективного возбуждения, например, с фононом в случае кристалла или магноном в случае ферромагнетика. Другими словами, нейтрон при столкновении с мишенью может передать часть своей кинетической энергии на

возбуждение движения атомов ближайших соседей ядра или наоборот увеличить свою энергию за счет движения атомов. Таким образом, рассеяние будет, вообще говоря, неупругим.

Тот факт, что взаимодействие происходит со всем коллективом, имеет важное следствие: рассеяние медленного нейтрона на связанном ядре может происходить без передачи энергии, то есть упруго. Этот процесс отличается от упругого рассеяния на свободном ядре, при котором ядро испытывает отдачу, что приводит к изменению энергии нейтрона при рассеянии. В случае системы химически связанных атомов (ядер) энергии нейтрона может быть недостаточно для возбуждения квазичастицы. В этом случае и говорят об *упругом рассеянии*<sup>\*)</sup>. Однако важно, что при этом вполне возможен процесс передачи импульса, поскольку передача импульса и передача энергии могут быть не связаны друг с другом.

Итак, в системе химически связанных ядер в общем виде мы не можем рассматривать рассеяние нейтрона как рассеяние двух тел, поскольку нейтрон фактически взаимодействует с коллективом ядер. Поэтому обычные методы фазовой теории рассеяния (§ 2.1) не применимы. Именно эту задачу решал Ферми [Fermi, 1936]. Он показал, что для вычисления дифференциальных сечений рассеяния медленных нейтронов на химически связанных атомных системах можно воспользоваться первым борновским приближением теории возмущений, если использовать потенциал взаимодействия нейтрона с ядром в виде

$$V(r) = C\delta(r), \quad (2.3.2)$$

где  $r$  – расстояние нейтрона до ядра. Константа  $C$  подбирается таким образом, чтобы при расчете длины рассеяния на свободном ядре в борновском приближении получался правильный результат – то есть постоянная длина рассеяния, известная из эксперимента. Вопрос о применимости метода Ферми далеко не очевиден. В борновском приближении потенциал взаимодействия между частицей и рассеивающей системой полагается слабым возмущением, таким, что можно ограничиться первым порядком теории возмущений. В результате в области эффективного взаимодействия волновая функция частицы мало отличается от исходной плоской волны, которая приписана частице в исходном состоянии. Для вычисления амплитуды рассеяния медленного нейтрона на ядре борновское приближение не может применяться, так как взаимодействие нейтрона с ядром является сильным (нуклон-нуклонным) взаимодействием (гл. 1): его энергия намного больше кинетической энергии нейтрона и волновая функция нейтрона в ядре не имеет ничего общего с падающей плоской волной. Однако, как уже было сказано (§ 2.1), область взаимодействия нейтрона с ядром,

<sup>\*)</sup> Упругое рассеяние нейтрона в описываемом случае в принципе отличается от упругого рассеяния на свободном ядре (§ 1.4). Там при упругом рассеянии энергия нейтрона изменяется из-за отдачи ядра, что и является основным механизмом замедления нейтронов.

характеризуемая длиной рассеяния  $a$ , пренебрежимо мала по сравнению с межатомным расстоянием  $d$  в конденсированном веществе.

Длина рассеяния определяется в экспериментах, например, по нейтронной рефлектометрии или интерферометрии. Типичное ее значение  $a \approx 10^{-12}$  см, типичные межатомные расстояния  $d \approx 10^{-8}$  см. Суммарный объем ядер, где волновая функция нейтрона сильно отличается от исходной плоской волны, ничтожно мал по сравнению с объемом всей совокупности атомов мишени. Вне ядра изменение волновой функции, по сравнению с плоской волной, сводится к сдвигу точки, где функция  $r\psi(r)$  обращается в ноль, на длину  $a$ .

Таким образом, если  $r_0$  – радиус действия сил нейтрон-ядро,  $a$  – длина рассеяния нейтрона на ядре,  $\lambda$  – де-бройлевская длина волны нейтрона, то обсуждаемые приближения обоснованы, если можно найти некую длину  $r$ , одновременно удовлетворяющую неравенствам [Fermi, 1936]:

$$r \ll \lambda, \quad r \gg r_0, \quad r \gg a.$$

Эти качественные соображения послужили основанием Ферми для его, как сказано в книге [Ландау и Лифшиц, 2001, т. 3, § 151], «своеобразной теории возмущений».

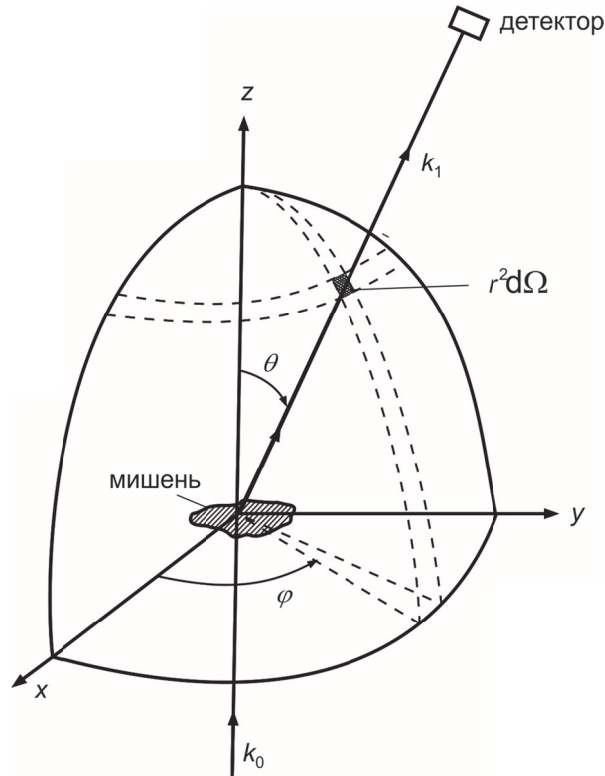


Рис. 2.3.1. Геометрия рассеяния (Lovesey, 1984).

*Приближение псевдопотенциала Ферми* было предложено для описания рассеяния медленных нейтронов в системах, состоящих из химических связанных атомов. Однако приближение точечного соударения не зависит от того, связано ядро или свободно, так как в формулу (2.1.2) входят характеристики только отдельных ядер, но не молекулы или конденсированного вещества в целом. Поэтому приближение псевдопотенциала должно выполняться и в случае свободного ядра.

Перейдем к рассмотрению задачи рассеяния в борновском приближении. Картина рассеяния состоит в следующем. Хорошо сколламированный пучок нейтронов падает на образец (мишень) небольшого размера ( $\sim 1 \text{ см}^3$ ), состоящий из  $\sim 10^{23}$  атомов, связанных межатомным взаимодействием в конденсированное состояние (твердое тело или жидкость). Рассеивающий потенциал действует в пределах ограниченного расстояния ( $r_0 \sim 10^{-15} \text{ м}$ ) от каждого ядра, так что за пределами мишени нейтроны не испытывают его влияние. Детектор рассеянных нейтронов расположен на расстоянии  $r \gg r_0$  (рис. 2.3.1).

Будем рассматривать мишень (вообще говоря, это система многих частиц) как единую частицу без учета ее внутренней структуры, которая не закреплена (свободная частица) и покоится в начальном состоянии. Как уже говорилось, задача сводится к задаче рассеяния на силовом центре с приведенной массой  $m$  (2.3.1). Если энергия нейтронов мала, чтобы изменить энергию ядра (мишени), то рассеяние будет упругим. Это означает, что величина волнового вектора нейтрона  $\vec{k}$  не будет меняться, меняться будет только его направление:  $k \equiv \sqrt{2m_n E} / \hbar = k_0 = k_1$ , где  $E$  – энергия системы нейтрон-мишень,  $\vec{k}_0, \vec{k}_1$  – волновые векторы падающего и отраженного нейтрона соответственно.

Из закона сохранения импульса следует

$$\vec{p}_0 + \vec{P}_0 = \vec{p}_1 + \vec{P}_1,$$

где  $\vec{p} = \hbar \vec{k}$  – импульс нейтрона,  $\vec{P} = \hbar \vec{K}$  – импульс ядра. Полагая  $\hbar = 1$ , запишем импульс, переданный нейтроном ядру в результате рассеяния в виде:

$$\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0 = \vec{K}_0 - \vec{K}_1. \quad (2.3.3)$$

В этом случае вектор  $\vec{q}$  называют *переданным импульсом* (импульсом передачи). В обычных единицах  $\vec{q}$  имеет размерность волнового вектора. В этом случае  $\vec{q}$  – это изменение волнового вектора нейтрона в результате рассеяния. Это определение мы будем использовать в сокращенном виде – *вектор рассеяния*<sup>\*)</sup>.

Уравнение Шредингера (у.Ш.) (2.1.1) представим в виде уравнения:

$$\left[ \frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + E \right] \Psi(\vec{r}) = V(\vec{r}) \Psi(\vec{r}), \quad (2.3.4)$$

В этом уравнении нет производной по времени, поскольку потенциал не

<sup>\*)</sup> Используются также термины «переданный волновой вектор» и «волновой вектор передачи».

зависит от времени. Граничные условия к уравнению (2.3.4), соответствующие постановке задачи о рассеянии, определяются тем, что при достаточно больших расстояниях  $r > r_0$ , взаимодействие нейтрона и мишени  $V = 0$  и волновая функция  $\Psi(\vec{r})$  является суперпозицией исходной плоской волны и рассеянной сферической волны (ср. с (2.1.10)):

$$\Psi(\vec{r})|_{r \rightarrow \infty} = \exp(i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}) + f(\theta) \frac{\exp(i\vec{k}_1 \cdot \vec{r})}{r}, \quad (2.3.5)$$

где  $f(\theta)$  – амплитуда рассеянной волны,  $\theta$  – полярный угол в сферической системе координат, если ось  $z$  направлена по вектору  $\vec{k}_0$  (рис. 2.3.1).

Перепишем выражение (2.3.5) в виде:

$$\Psi(\vec{r}) = \Psi_0(\vec{r}) + \Psi_1(\vec{r}), \quad (2.3.6)$$

где  $\Psi_0(\vec{r})$  – волновая функция падающих нейтронов. Она удовлетворяет невозмущенному уравнению:

$$[\nabla^2 + k_0^2] \Psi_0(\vec{r}) = 0, \quad (2.3.7)$$

$$\Psi_0(\vec{r}) = \exp(i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}) = \exp(ikz). \quad (2.3.8)$$

Используя (2.3.4) получим уравнение для рассеянной волны:

$$[\nabla^2 + k^2] \Psi_1(\vec{r}) = \frac{2m}{\hbar^2} V(\vec{r}) \Psi_1(\vec{r}). \quad (2.3.9)$$

Формальное решение этого уравнения имеет вид интегрального уравнения:

$$\Psi_1(\vec{r}) = \frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \frac{\exp(ik_1|\vec{r} - \vec{r}'|)}{|\vec{r} - \vec{r}'|} V(\vec{r}') \Psi(\vec{r}') d^3\vec{r}', \quad (2.3.10)$$

Первый множитель под интегралом представляет собой функцию Грина

$$G(\vec{r}, \vec{r}') = -\frac{1}{4\pi} \frac{\exp(ik|\vec{r} - \vec{r}'|)}{|\vec{r} - \vec{r}'|}, \quad (2.3.11)$$

с помощью которой выражение (2.3.6) можно переписать в виде уравнения Дайсона, с помощью которого решение задачи можно свести к общему виду (гл. 8). Здесь мы пойдем по упрощенному пути.

Формально, если известен потенциал  $V(\vec{r})$ , система уравнений (2.3.4) – (2.3.10) позволяет найти амплитуду рассеяния  $f(\theta)$ . Однако, как было отмечено в главе 1, при современном состоянии теории ядерных сил эта задача не решается. На самом деле нам точный вид потенциала и не нужен, поскольку ядерные силы действуют на медленные нейтроны на очень малом, несколько ферми, расстоянии и в этом смысле псевдопотенциал Ферми качественно отражает ситуацию. Для нас важно другое – медленный нейтрон слабо возбуждает мишень в силу того, что передает энергию всему коллективу атомов. Эти два обстоятельства – предельно малый (в масштабе размера атома и, тем более, в масштабе межатомных

расстояний в конденсированном веществе) радиус действия ядерных сил и слабое возмущение нейтроном мишени, служат основанием для использования теории возмущений относительно потенциала  $V$ . В теории Ферми используется первое борновское приближение – линейное приближение по  $V$ , когда все члены за линейным отбрасываются, что эквивалентно теории линейной реакции (гл. 4). Обычно первое борновское приближение называют борновским. Борновское приближение означает замену волновой функции в правой части (2.3.10) на волновую функцию падающей плоской волны.

В случае *однократного рассеяния и центрально симметричного потенциала* ( $s$  – рассеяние) потенциал взаимодействия зависит только от расстояния между нейтроном и ядром:

$$V(\vec{r}) = V(|\vec{r}|) = V(r). \quad (2.3.12)$$

В результате получаем

$$\Psi_1(\vec{r}) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \frac{\exp(ik_1|\vec{r}-\vec{r}'|)}{|\vec{r}-\vec{r}'|} V(\vec{r}') \exp(i(\vec{k}_0 \cdot \vec{r}')) d\vec{r}', \quad (2.3.13)$$

Имея в виду граничное условие (2.3.5), рассмотрим асимптотику этого выражения на больших расстояниях  $r$  наблюдателя от рассеивающего центра. Нейтроны, имеющие после рассеяния волновой вектор  $\vec{k}_1$  (по модулю равный  $k_0$ ), будут наблюдаться в точках  $\vec{r}$ , расположенных в направлении вектора  $\vec{k}_1$ . При  $r \rightarrow \infty$  величину  $|\vec{r}-\vec{r}'|$  в знаменателе (2.3.13) заменим на  $r$ . В показателе такой заменой не обойтись. Рассмотрим разложение:

$$|\vec{r}-\vec{r}'| = r \left[ 1 + \frac{r'^2}{r^2} - \frac{2\vec{r} \cdot \vec{r}'}{r^2} \right]^{1/2} \approx r \left( 1 - \frac{\vec{r} \cdot \vec{r}'}{r^2} \right) = r - \frac{\vec{r} \cdot \vec{r}'}{r}. \quad (2.3.14)$$

Тогда из (2.3.13) получаем

$$\Psi_1(\vec{r}) \Big|_{r \rightarrow \infty} = -\exp(ikr)/r \left[ \frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \exp[i(\vec{k}_0 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}'] V(r') dr' \right]. \quad (2.3.15)$$

Сравнивая (2.3.15) с (2.3.5), получаем амплитуду рассеяния в борновском приближении

$$f(\theta) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \exp[i(\vec{k}_0 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}'] V(r') dr'. \quad (2.3.16)$$

Это выражение можно переписать в виде фурье-представления потенциала взаимодействия:

$$f(\vec{q}) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{r}') V(r') dr', \quad (2.3.17)$$

где  $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$  – вектор рассеяния (2.3.3).

Формула (2.3.17) показывает, что в борновском приближении амплитуда рассеяния определяется переданным импульсом, но не  $\vec{k}_0$  и  $\vec{k}_1$  по отдельности

Подставляя (2.3.2) в (2.3.16) и вспоминая, что  $f(\theta) = -a$ , (2.2.15), получаем

$$C = \frac{2\pi\hbar^2}{m} a. \quad (2.3.18)$$

Из (2.3.16) и (2.3.17) видно, что в борновском приближении амплитуда рассеяния пропорциональна приведенной массе  $m$ . Чтобы избежать появления в формулах приведенной массы, вместо длины рассеяния на свободном ядре, вводят длину рассеяния на закрепленном или сильно связанном ядре:

$$b = \frac{m_n}{m} a = \left(1 + \frac{m_n}{M}\right) a, \quad (2.3.19)$$

которая имела бы место, если бы масса ядра была бесконечно большой. Именно для этих длин приводятся данные в таблицах.

Итак, *псевдопотенциал Ферми*, описывающий в борновском приближении взаимодействие нейтрона с ядром, имеет вид

$$V(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} b \delta(\vec{r}). \quad (2.3.20)$$

В работе [Fermi, 1936] Ферми в формуле (2.3.20) писал знак « $\leftarrow$ », поскольку он определял длину рассеяния как низкоэнергетический предел амплитуды рассеяния. Позже эксперименты [Fermi and Zinn, 1946; Fermi and Marshall, 1947] показали, что длина рассеяния большинства ядер положительна. Поэтому Ферми изменил знак в исходном выражении (2.2.15), чтобы длина рассеяния была положительной величиной. Так это изменение знака и повелось с тех пор и является теперь общепринятым.

Метод Ферми основан на предположении, что амплитуда рассеяния является постоянной величиной, определяемой экспериментально. Постоянная амплитуда получается формальным образом из теории возмущений при использовании «точечного» потенциала Ферми –  $\delta$ -функция обращает интеграл в постоянную величину, не зависящую от  $\vec{q}$ . Отметим еще раз, что псевдопотенциал Ферми физически обоснован малым радиусом действия ядерных сил, в пределах же этого радиуса реализуется сильное фундаментальное взаимодействие (см. гл.1). Псевдопотенциал Ферми дает правильное значение амплитуды рассеяния при формальном применении теории возмущений, которая, однако, не применима к такого рода полям. Другими словами, Ферми показал, что борновское приближение применимо к задаче ядерного рассеяния нейтронов (изотропное  $s$ -рассеяние) только при использовании  $\delta$ -образного потенциала. В этом смысле теория, основанная на методе Ферми, является *феноменологической*.

Все предыдущее рассмотрение относилось к процессам рассеяния без учета поглощения нейтронов. При наличии поглощения амплитуда рассеяния становится комплексной и тогда псевдопотенциал Ферми в виде (2.3.20) уже не в состоянии сыграть свою роль. Отметим еще, что амплитуда рассеяния в общем



случае зависит от начального и конечного волнового вектора в отдельности, а не только от их разности  $\vec{q}$ , как в (2.3.17) в борновском приближении.

Запишем сечения рассеяния. Пусть детектор расположен в точке  $r$  и его окно охватывает элемент телесного угла  $d\Omega$  от рассеивающего центра: рис. 2.1.2. Микроскопическое дифференциальное сечение рассеяния определяется формулой

$$\frac{d\sigma_s}{d\Omega} = \frac{\text{поток нейтронов, рассеянных в элемент телесного угла}}{\text{падающий поток}} \quad (2.3.21)$$

Поток падающих нейтронов (2.1.4) перепишем в виде

$$\vec{J}_{\text{пад.}} = \frac{\hbar \vec{k}_0}{m_n}. \quad (2.3.22)$$

Поток рассеянных нейтронов можно найти, используя (2.1.3) и волновую функцию рассеянных нейтронов (2.3.5). Получаем

$$\vec{J}_{\text{расс.}} = \frac{\hbar \vec{k}_1}{m_n} \frac{|f(q)|^2}{r^2}. \quad (2.3.23)$$

Вероятность того, что рассеявшаяся частица пройдет через элемент поверхности  $dS = r^2 d\Omega$ , окружающей область взаимодействия (рис. 2.1.2), пропорциональная величине  $|\vec{J}_{\text{расс.}}| dS$ . Таким образом,

$$\frac{d\sigma(q)}{d\Omega} = \frac{J_{\text{расс.}} r^2}{J_{\text{пад.}}} = \frac{k_1}{k_0} |f(q)|^2. \quad (2.3.24)$$

В борновском приближении

$$\frac{d\sigma(q)}{d\Omega} = \frac{k_1}{k_0} \left| \frac{m_n}{2\pi\hbar^2} \int \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{r}) V(\vec{r}') d\vec{r}' \right|^2. \quad (2.3.25)$$

Микроскопическое полное сечение рассеяния

$$\sigma = \int \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right) d\Omega. \quad (2.3.26)$$

Полные сечения отличаются для сильно связанных и свободных ядер. Перепишем (2.3.19) в виде:

$$b = \frac{A+1}{A} a, \quad (2.3.27)$$

где  $A$  – атомный номер. Теперь

$$\sigma_{\text{связ.}} = \left( 1 + \frac{1}{A} \right)^2 \sigma_{\text{своб.}}. \quad (2.3.28)$$

Для тяжелых атомов это отличие между сечениями рассеяния сильно связанных и свободных атомов достаточно мало. Однако для легких атомов оно значительно, особенно для атомов водорода  $^1\text{H}$  ( $A = 1$ ), для которого:

$$\sigma_{\text{связ.}} = 4\sigma_{\text{своб.}}. \quad (2.3.29)$$

Макроскопические сечения рассеяния получаются умножением

микроскопических сечений на плотность вещества  $\rho = N/V =$  число рассеивающих центров /см<sup>3</sup>:

$$\Sigma = \rho\sigma. \quad (2.3.30)$$

Соответственно, макроскопическое дифференциальное сечение рассеяния принимает вид

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega} = \rho \frac{d\sigma}{d\Omega}. \quad (2.3.31)$$

Микроскопические сечения рассеяния выражаются в единицах площади, в барнах, 1 барн = 10<sup>-24</sup> см<sup>2</sup>. Макроскопические сечения рассеяния выражаются в единицах обратной длины, см<sup>-1</sup>. Макроскопические сечения рассеяния используются при подготовке экспериментов. Например, пропускание нейтронов в образце толщиной  $d$  имеет выражение  $\exp(-\Sigma_i d)$ . Вероятность рассеяния нейтрона после прохождения расстояния  $d$  в образце есть  $\Sigma_i \exp(-\Sigma_i d)$ , где  $\Sigma_i$  – полное макроскопическое сечение рассеяния, которое, как будет видно ниже, включает компоненты рассеяния и поглощения.

В случае неоднородных по составу образцов, состоящих из различных рассеивателей (атомов, молекул, полостей и т.п.) используют плотность длины рассеяния, которая представляет собой сумму длин рассеяния отдельных рассеивателей, деленную на объем образца. Единицей измерения является обратная длина в квадрате (см<sup>-2</sup>). Для молекулы с молекулярным объемом  $v_{\text{мол.}}$ , составленной из  $N$  сортов атомов с длинами рассеяния  $b_i$  и числом атомов  $n_i$  сорта  $i$ , плотность длины рассеяния определяется выражением (см. также (3.2.5))

$$\rho_s = \frac{1}{v_{\text{мол.}}} \sum_{i=1}^N n_i b_i. \quad (2.3.32)$$

Молекулярный объем можно вычислить, зная молекулярную массу  $m_{\text{мол.}}$  и массовую плотность  $\rho_{\text{мол.}}$ :

$$v_{\text{мол.}} = \frac{m_{\text{мол.}}}{N_A \rho_{\text{мол.}}}, \quad (2.3.33)$$

где  $N_A$  – число Авогадро.

Например, для молекул воды H<sub>2</sub>O и D<sub>2</sub>O  $b_H = -3.739$  фм,  $b_D = 6.671$  фм,  $b_O = 5.803$  фм,  $v_{\text{мол.}}(\text{D}_2\text{O}) \approx v_{\text{мол.}}(\text{H}_2\text{O}) = 2.99 \cdot 10^{-23}$  см<sup>3</sup> получаем плотности длины рассеяния  $\rho_s(\text{H}_2\text{O}) = -5.602 \cdot 10^9$  см<sup>-2</sup> и  $\rho_s(\text{D}_2\text{O}) = 6.403 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>. Эти данные используют в методе изотопного замещения при малоугловом рассеянии нейтронов

## § 2.4 Основные формулы рассеяния

Поведение системы в результате столкновения нейтрона с мишенью отражается в дважды дифференциальном сечении рассеяния:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{\text{вероятность перехода из начального в конечное состояние системы в элемент телесного угла } d\Omega \text{ с переданной энергией } dE \text{ за единицу времени}}{\text{число рассеивающих центров} \times \text{поток падающих нейтронов}}. \quad (2.4.1)$$

### 2.4.1. Золотое правило Ферми

Мы полагаем, что наша система (нейтрон плюс мишень) находится первоначально в состоянии  $|a\rangle$ , стационарном относительно исходного гамильтониана  $H_0$ . В борновском приближении потенциал взаимодействия  $V$  приводит к малому возмущению системы. Так как нейтрон до и после столкновения является свободным, система обладает непрерывным спектром, независимо от спектра мишени самой по себе. Вычисление вероятности переходов в непрерывном спектре рассматривается в стандартных курсах квантовой механики [см., например, Ландау и Лифшиц, 2001; т. 3, §§ 43, 126]. Исходную формулу для вероятности перехода из некоторого начального состояния  $|a\rangle$  в континуум конечных состояний  $|b\rangle$  в единицу времени в первом порядке нестационарной теории возмущений запишем в виде [Lovesey, 1984; Carpenter and Loong, 2015]:

$$dW_{ba} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle b|V|a\rangle|^2 \rho(E_b), \quad (2.4.2)$$

где  $\rho(E_b)$  – плотность конечных состояний (число состояний на единицу энергии). Формулу (2.4.2) называют «золотым правилом Ферми». Угловые скобки обозначают матричный элемент оператора энергии возмущения:

$$\langle b|V|a\rangle = \iiint_{\vec{r}} \Psi_b^*(\vec{r}, \{\vec{r}\}_N) V(\vec{r}, \{\vec{r}\}_N) \Psi_a(\vec{r}, \{\vec{r}\}_N) d^3\vec{r} d^{3N}\{\vec{r}\}_N, \quad (2.4.3)$$

где  $\Psi_{a(b)}$  – волновые функции системы в состоянии  $a(b)$ . В реальном эксперименте, естественно, могут проявляться переходы  $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$  и в случае, когда матричный элемент (2.4.3) равен нулю, если члены второго и следующих порядков, хотя и малы, но существуют.

Так как до и после рассеяния нейтрон и мишень независимы, волновая функция в начальном и конечном состояниях является произведением волновой функции нейтрона и волновой функции мишени. Волновые функции нейтрона  $\phi_k(\vec{r})$  нам известны – это плоские волны. Волновую функцию мишени получить в общем виде не представляется возможным, так что она всегда имеется в виду в неявном виде. Поэтому интегрирование в (2.4.3) проводится отдельно по всей совокупности положений нейтрона  $\vec{r}$  и всем  $N$  положениям атомов мишени  $\{\vec{r}\}_N$ .

Обозначим начальное и конечное состояния мишени через  $i$  и  $f$ . Соответственно, энергии внутреннего состояния мишени до и после рассеяния

будут  $E_i$  и  $E_f$ . Кинетическая энергия нейтрона до рассеяния  $E_0 = \hbar^2 k_0^2 / 2m$ , после рассеяния  $E_1 = \hbar^2 k_1^2 / 2m$ . Полная энергия должна сохраняться:  $E_0 + E_i = E_1 + E_f$ , так что изменение энергии нейтрона при рассеянии  $\Delta E = E_1 - E_0$  удовлетворяет условию:

$$\hbar\omega = E_1 - E_0 = E_i - E_f. \quad (2.4.4)$$

Изменение энергии нейтрона при рассеянии  $\hbar\omega$  будем называть, аналогично вектору рассеяния (§ 2.3), *энергией рассеяния*<sup>\*)</sup>.

Введем дельта функцию:

$$\delta(E_0 + E_i - E_1 - E_f) = \delta(E_i - E_f - \hbar\omega), \quad (2.4.5)$$

эта функция равна нулю, если не выполняется соотношение (2.4.4). Воспользуемся некоторыми свойствами дельта функций:

$$\int_{-\infty}^{\infty} dx' \delta(x - x') g(x') = g(x); \quad \delta(ax) = \frac{1}{|a|} \delta(x), \quad (2.4.6)$$

где  $a$  не зависит от  $x$ . Используя (2.4.6), перепишем (2.4.5) в виде:

$$\int_{-\infty}^{\infty} dE_1 \delta(E_0 + E_i - E_1 - E_f) = 1. \quad (2.4.7)$$

Итак, с учетом закона сохранения энергии при рассеянии (2.4.4) и выше приведенных пояснений, представим вероятность перехода в борновском приближении как

$$dW_{ba} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle f \vec{k}_1 | V(r) | \vec{k}_0 i \rangle \right|^2 \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \rho(E_b), \quad (2.4.8)$$

где определены начальные  $|\vec{k}_0 i\rangle = \phi_{\vec{k}_0} |i\rangle$  и конечные  $|\vec{k}_1 f\rangle = \phi_{\vec{k}_1} |f\rangle$  состояния.

В выражение (2.4.8) входит плотность конечных состояний на единицу энергии  $\rho(E_b)$ . Чтобы ее вычислить, надо определить нормировку волновых функций. Согласно стандартной процедуре поместим всю систему в куб со стороной  $L$ , которая является большой, но конечной. Граничные условия для волновых функций состоят в требовании, чтобы они совпадали на противоположных гранях куба. При этом условии волновые функции свободного нейтрона в начальном  $\phi_{\vec{k}_0}$  и конечном  $\phi_{\vec{k}_1}$  состояниях будут зависеть только от разрешенных волновых векторов, для которых величины  $k_1 L / 2\pi$  будут целыми числами, где  $k_1$  – проекции на оси координат, перпендикулярные граням куба. Допустимые волновые векторы занимают пространство волновых векторов дискретно и равномерно в объеме  $(2\pi/L)^3$  на каждый волновой вектор. В нашем случае, когда нейтрон после рассеяния имеет волновой вектор  $\vec{k}_1$  с точностью до

<sup>\*)</sup> Часто используются термины «переданная энергия» и «энергия передачи».

бесконечно малого объема  $d\vec{k}_1$ , а мишень переходит из состояния  $i$  в состояние  $f$ , число конечных состояний определяется только нейтроном.

Если в качестве волновых функций падающего нейтрона и рассеянного нейтрона  $\phi_{k_1}(\vec{r})$  выбрать плоские волны, нормированные соответственно на единичный поток и  $\delta$ -функцию:

$$\phi_{k_0}(\vec{r}) = \left(\frac{m}{p_0}\right)^{\frac{1}{2}} \exp(i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}), \quad \phi_{k_1}(\vec{r}) = \frac{1}{(2\hbar\pi)^{\frac{1}{2}}} \exp(i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}), \quad (2.4.9)$$

то для плотности конечных состояний (в единице объема) получим (переходя к сферическим координатам):

$$\rho_{k_1}(E_1) = d^3 p_1 / dE_1 = p_1^2 dp_1 d\Omega / dE_1 = m\hbar k_1 d\Omega.$$

Используя выражения  $E_1 = \hbar^2 \vec{k}_1^2 / 2m$ ,  $\hbar \vec{k}_1 = \vec{p}_1$ ,  $dE_1 = d\vec{p}_1 \vec{p}_1 / m$ ,  $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$ , для дифференциального сечения рассеяния частиц в элемент телесного угла  $d\Omega$  и в интервал энергий  $dE_1$  получаем формулу:

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_1} &= \frac{dW(\vec{q}, \omega)}{d\Omega dE_1} = \\ &= \frac{k_1}{k_0} \left(\frac{m}{2\hbar^2 \pi}\right) \sum_f \left| \langle f | \int d\vec{r} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) \hat{V}(\vec{r}) | i \rangle \right|^2 \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \end{aligned} \quad (2.4.10)$$

Формулу (2.4.10) тоже называют золотым правилом Ферми. Мы рассматриваем неполяризованные нейтроны, иначе надо было бы еще, кроме суммирования по конечным состояниям, произвести усреднение по спиновым состояниям нейтронов.

Кинематический множитель  $k_1/k_0$  возникает из отношения потоков рассеянных и падающих нейтронов (2.4.1) и не зависит от природы рассеивателя. В экспериментах случается, что этот множитель подавляет сечение рассеяния. Этот факт надо иметь в виду и избегать его при постановке эксперимента.

Заметим, что спектры рассеяния медленных нейтронов зависят не отдельно от волновых векторов  $\vec{k}_0$  и  $\vec{k}_1$ , а от вектора рассеяния  $\vec{q}$ . Это результат борновского приближения, справедливость которого, напомним, обусловлена малым возмущающим действием потенциала взаимодействия.

Обозначим через  $\vec{R}_l$  координату  $l$ -го атомного ядра, индексом  $l$  будем обозначать все относящиеся к нему величины. Потенциал взаимодействия нейтронов с мишенью, псевдопотенциал Ферми (2.2.16), запишется как

$$V(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \sum_l b_l \delta(\vec{r} - \vec{R}_l). \quad (2.4.11)$$

Определение псевдопотенциала исключает любые изменения внутренних

степеней свободы ядер – взаимодействие нейтрона с ядром упругое.

Распишем матричный элемент в (2.4.10), используя псевдопотенциал (2.4.11):

$$\begin{aligned} & \left| \langle f | \int d\vec{r} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) \hat{V}(\vec{r}) | i \rangle \right|^2 = \\ & = \langle f | \int d\vec{r} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) \hat{V}(\vec{r}) | i \rangle^* \langle f | \int d\vec{r} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) \hat{V}(\vec{r}) | i \rangle = \\ & = \left( \frac{2\hbar^2\pi}{m} \right)^2 \sum_{lm} b_l b_m \langle i | \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{R}_l) | f \rangle \times \langle f | \exp(i\vec{q} \cdot \vec{R}_m) | i \rangle \end{aligned} \quad (2.4.12)$$

Используя это выражение в (2.4.10), получаем

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} = \frac{k_1}{k_0} \sum_{lm} b_l b_m \left| \langle i | \exp(-i\vec{q} \cdot (\vec{R}_l - \vec{R}_m)) | i \rangle \right|^2 \times \delta(E_i - E_f - \hbar\omega). \quad (2.4.13)$$

Эту формулу часто называют *основной формулой (master formula) рассеяния* медленных нейтронов. В следующем разделе мы ее распишем подробнее.

### 2.4.2. Когерентное и некогерентное рассеяние

Рассмотрим рассеяние неполяризованных, монохроматических медленных нейтронов совокупностью  $N$  одного сорта ядер ( $N \sim 10^{23}$ ), то, что мы называем мишенью. Энергия медленных нейтронов слишком мала, чтобы возбуждать ядра. Поэтому взаимодействие носит характер ядерного упругого. Наблюдаемая интенсивность есть квадрат суммы волн, рассеянных от полного набора ядер. Если все ядра имеют одинаковые длины рассеяния, например, в случае одинаковых бесспиновых изотопов, рассеяние будет полностью когерентным. Однако, если по какой-то причине длины рассеяния ядер отличаются от средней длины рассеяния  $\bar{b} = \sum_l f_l b_l$ , где  $f_l$  – частота появления ядра типа  $l$  ( $\sum_l f_l = 1$ ), то рассеяние будет содержать две компоненты – когерентную и некогерентную. Полагая, что нет корреляции между длинами рассеяния ядер на разных узлах, будем иметь:

$$\overline{b_l b_m} = \begin{cases} (\bar{b})^2 \text{ при } l \neq m, & \bar{b} = \sum_l f_l b_l \\ \bar{b}^2 \text{ при } l = m, & \bar{b}^2 = \sum_l f_l b_l^2 \end{cases} \quad (2.4.14)$$

Дважды дифференциальное сечение рассеяния (2.4.13) принимает вид

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} &= \frac{k_1}{k_0} \sum_f \left[ (\bar{b})^2 \left| \sum_{l \neq m} \langle f | \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{R}_l) | i \rangle \right|^2 + \right. \\ & \left. + \bar{b}^2 \left| \sum_l \langle f | \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{R}_l) | i \rangle \right|^2 \right] \times \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \end{aligned} \quad (2.4.15)$$

Добавим и вычтем в квадратных скобках член  $(\bar{b})^2 \left| \sum_l \langle f | \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{R}_l) | i \rangle \right|^2$ .

Перегруппировав члены в (2.4.15) представим дважды дифференциальное сечение

рассеяния в виде суммы когерентного (к) и некогерентного (нк) рассеяния:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} = \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} \right)_k + \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} \right)_{нк}, \quad (2.4.16)$$

где в случае когерентного рассеяния:

$$\begin{aligned} \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} \right)_k &= \frac{k_1}{k_0} b_k^2 \sum_f \sum_{lm} \langle f | \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{R}_l) \cdot \exp(i\vec{q} \cdot \vec{R}_m) | i \rangle \times \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) = \\ &= \frac{k_1}{k_0} b_k^2 \sum_f \left| \sum_l \langle f | \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{R}_l) | i \rangle \right|^2 \times \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \end{aligned} \quad (2.4.17)$$

и в случае некогерентного рассеяния:

$$\begin{aligned} \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} \right)_{нк} &= \frac{k_1}{k_0} b_{нк}^2 \sum_f \sum_l \langle f | \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{R}_l) \cdot \exp(i\vec{q} \cdot \vec{R}_l) | i \rangle \times \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) = \\ &= \frac{k_1}{k_0} b_{нк}^2 \sum_f \sum_l \left| \langle f | \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{R}_l) | i \rangle \right|^2 \times \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \end{aligned}, \quad (2.4.18)$$

где введены обозначения:

$$b_k^2 = (\bar{b})^2, b_{нк}^2 = \overline{b^2} - (\bar{b})^2. \quad (2.4.19)$$

Таким образом, когерентное рассеяние получается в результате замены различных длин рассеяния на усредненную длину рассеяния  $\bar{b}$ , сохраняя все остальное без изменений. Сечение некогерентного рассеяния есть разница между полным сечением и сечением когерентного рассеяния. Как и (2.4.13), формулы (2.4.17) и (2.4.18) называют *основными формулами когерентного и некогерентного рассеяния*, соответственно (для моноатомного рассеивателя).

Когерентное рассеяние возникает из-за корреляций в положениях и движении двух ядер – различных пар. Это скоррелированное движение приводит к интерференции рассеянных волн, которая проявляется в совокупности интенсивностей, меняющейся в зависимости от угла рассеяния. С другой стороны, формула (2.4.18) показывает, что корреляции между различными парами никогда не входят в некогерентное рассеяние, которое происходит от отдельных изотопов.

Некогерентное рассеяние может возникнуть по различным причинам. Понимание этих различий определяет оптимальный выбор образцов, соответствующих типов спектрометров и обработки экспериментальных данных. Более того, термин «некогерентный» в применении к рассеянию нейтронов существенно отличается от понятия некогерентности в рассеянии рентгеновских лучей. Для рассеяния нейтронов и рентгеновских лучей содержание и

соответствующие характеристики некогерентности различны.

При проведении измерений структуры и динамики эксперименты должны быть направлены на выделение когерентного рассеяния. Некогерентное рассеяние, если оно имеется, является фоном под когерентным рассеянием. Однако, хотя некогерентное рассеяние не содержит интерференционных эффектов от различных рассеивающих центров, оно содержит информацию об одночастичных движениях, особенно в водородсодержащих материалах.

Контролируемое изменение изотопного содержания, так называемое изотопное замещение, является очень эффективным методом контрастирования в экспериментах по рассеянию нейтронов. Этот метод позволяет «высветить» нужные элементы изучаемой структуры. Особенно успешно он работает при малоугловом рассеянии нейтронов при замещении водорода и дейтерия. Таким способом, в частности, можно подавить сильное некогерентное рассеяние на водороде. При этом изотопное замещение можно делать как в образце, так и в элементах экспериментальной установки, таких как контейнер для образца и окна, через которые проходит пучок.

## § 2.5. Эффекты некогерентности

### 2.5.1. Спиновая некогерентность

Прежде всего, отметим, что до сих пор мы полагали, что спин ядра мишени равен нулю. Если это не так, то некогерентность возникает даже при рассеянии на отдельном ядре, что обусловлено тем, что вблизи ядерного резонанса амплитуды рассеяния (§ 1.3) будут различаться. Примером может служить твердый водород, который может быть согласно принципу Паули в двух состояниях: пара-, когда спины протонов параллельны (синглетное основное состояние) и орто-, когда спины протонов антипараллельны (триплетное, с большей энергией). В этом случае в сечении рассеяния добавится дополнительное слагаемое в член некогерентного рассеяния.

Если ядро мишени имеет спин  $j$ , то составное ядро может иметь спин  $I_{\pm} = j \pm \frac{1}{2}$ . В этом случае резонанс в эффективном сечении соответствует лишь одному из спиновых состояний, тогда как для другого спинового состояния сечение будет определяться только потенциальным рассеянием. Так как распределение спиновых состояний  $I_{\pm}$  случайно, то амплитуды рассеяния тоже будут меняться. В результате часть рассеянной волны не может интерферировать с падающей. Стало быть, она некогерентна.

В квантовой механике рассеяние некогерентно, когда в процессе рассеяния меняется квантовое состояние рассеивающего ядра. В рассматриваемом случае в процессе рассеяния может измениться направление спина ядра, то есть измениться квантовое состояние (оно сопровождается изменением направления спина нейтрона). Это изменение квантового состояния рассеивающего ядра и



является причиной отсутствия интерференции.

Соответственно состояниям  $I_{\pm}$  потенциал взаимодействия тоже будет иметь две компоненты  $V_+(r)$  и  $V_-(r)$ . Чтобы найти амплитуду рассеяния нужно пройти путь, указанный в § 2.2. Для этого вводят спиновую волновую функцию системы [Турчин, 1963]:

$$\phi(s_z S_z) = \chi(s_z) \lambda(S_z), \quad (2.5.1)$$

где  $\chi(s_z)$  – спиновая волновая функция нейтрона,  $s_z$  –  $z$ -компонента оператора спина нейтрона,  $\lambda(S_z)$  – спиновая волновая функция ядра,  $S_z$  –  $z$ -проекция спина ядра. Функция (2.5.1) тоже имеет две компоненты  $\phi_{\pm}$ .

Введем спиновые операторы

$$\eta_+ = \frac{j+1+2\hat{S}\hat{S}}{2j+1},$$

$$\eta_- = \frac{j-2\hat{S}\hat{S}}{2j+1}.$$

При действии на волновую функцию с полным спином  $I = j + \frac{1}{2}$  оператор  $\eta_+$  оставляет ее без изменения, а оператор  $\eta_-$  обращает в ноль. При действии на волновую функцию со спином  $I = j - \frac{1}{2}$  оператор  $\eta_+$  обращает ее в ноль, а  $\eta_-$  действует как единичный оператор.

Так как взаимодействие нейтрона с ядром зависит от взаимной ориентации спинов, то пространственная часть волновой функции будет различной для параллельной и антипараллельной ориентации спинов. Поэтому решение у. Ш. с потенциалом  $V = \eta_+ V_+ + \eta_- V_-$  ищется в виде

$$\Psi = \psi_+(r) \phi_+(s_z S_z) + \psi_-(r) \phi_-(s_z S_z), \quad (2.5.2)$$

где  $\phi_+(s_z S_z) \equiv \eta_+ \phi(s_z S_z)$ ,  $\phi_-(s_z S_z) \equiv \eta_- \phi(s_z S_z)$ .

Асимптотическое решение для функций  $\psi_+(r)$  имеет вид:

$$\psi_+(r) = e^{i(\vec{k}\cdot\vec{r})} + b_{\pm} \frac{e^{ikr}}{r}, \quad (2.5.3)$$

где  $b_{\pm}$  (длина рассеяния при параллельной и антипараллельной ориентациях). Амплитуда рассеяния принимает вид:

$$b = (g^+ b_+ + g^- b_-) + \frac{2(b_+ - b_-)}{2j+1} \vec{S}, \quad (2.5.4)$$

где  $g^{\pm}$  (статистические веса двух спиновых состояний)

$$g^+ = \frac{j+1}{2j+1}, \quad g^- = \frac{j}{2j+1}. \quad (2.5.5)$$

Формулу (2.5.4) обычно выводят на основе качественных соображений [например, Ахиезер и Померанчук, 1950; Юз, 1955]. В (2.5.4) первое слагаемое определяет амплитуду волны  $b_k$ , когерентно рассеянной ядром, так как эта часть рассеянной волны дает ту же спиновую функцию  $\phi(S_z s_z)$ , что и падающая волна, поэтому рассеянная и падающая волны складываются (суперпозиция). Таким образом, длина когерентного рассеяния есть

$$b_k = g^+ b_+ + g^- b_-, \quad (2.5.6)$$

Второй член в (2.5.4) содержит скалярное произведение операторов спина ядра и нейтрона:  $\vec{s}\vec{S}$ . Под действием этих операторов спиновая функция  $\phi(S_z s_z)$  меняется, следовательно, эта вторая часть рассеянной волны имеет, вообще говоря, другую спиновую зависимость. В таком случае суперпозиции между рассеянной и падающей волной не происходит, т.е. рассеяние является некогерентным.

Вычислим сечение рассеяния для неполяризованного пучка нейтронов [Турчин, 1963]. Формула (2.1.11) обобщается очевидным образом на случай наличия спинов

$$\sigma_s = 4\pi \sum_{\sigma_z^{\pm}} \left| \left[ b_k + \frac{2(b_+ - b_-)}{2j+1} \vec{s}\vec{\sigma} \right] \phi(S_z, s_z) \right|^2. \quad (2.5.7)$$

Кроме того, выражение (2.5.7) следует еще усреднить по спиновым волновым функциям падающего нейтрона. Для краткости мы будем обозначать суммирование по спиновым переменным (т.е. квантовомеханическое усреднение) и усреднение по спинам падающих нейтронов скобками  $\langle \rangle$ . Тогда, учитывая, что все операторы, входящие в (2.5.7), самосопряженные, получаем

$$\sigma_s = 4\pi \left\langle b_k + \frac{2(b_+ - b_-)}{2j+1} \vec{s}\vec{S} \right\rangle^2. \quad (2.5.8)$$

Так как операторы  $\vec{s}$  и  $\vec{S}$  коммутируют, квадрат суммы содержит три члена: сумму квадратов и удвоенное произведение. Квадрат первого члена определяет сечение когерентного рассеяния

$$\sigma_s^k = 4\pi (b_k)^2. \quad (2.5.9)$$

Удвоенное произведение после усреднения обращается в нуль благодаря неполяризованности пучка нейтронов. Квадрат второго члена содержит оператор

$$(\vec{s}\vec{S})^2 = (S_z s_x + S_y s_y + S_z s_z)^2. \quad (2.5.10)$$

Раскрывая скобки, находим, что смешанные члены усреднения снова обращаются в нуль, ибо содержат произведения типа  $s_x s_y$ . Квадраты же, учитывая коммутативность операторов  $\vec{s}$  и  $\vec{S}$  и независимость спинов нейтрона и ядра (усреднение происходит по спиновым волновым функциям до рассеяния), можно преобразовать следующим образом:

$$\langle (S_x s_x)^2 \rangle = \langle S_x^2 \rangle \langle s_x^2 \rangle. \quad (2.5.11)$$

Вследствие эквивалентности всех направлений для неполяризованных нейтронов

$$\langle s_x^2 \rangle - \langle s_y^2 \rangle = \langle s_z^2 \rangle - \frac{1}{3} \langle s^2 \rangle - \frac{1}{4}. \quad (2.5.12)$$

Поэтому

$$\langle (\vec{s} \vec{S})^2 \rangle = \frac{1}{4} \langle (S_x^2 + S_y^2 + S_z^2) \rangle = \frac{1}{4} j(j+1). \quad (2.5.10a)$$

Подставляя это в (2.5.8), находим сечение некогерентного рассеяния

$$\sigma_s^{\text{нк}} = 4\pi (b_+ - b_-)^2 \frac{j(j+1)}{(2j+1)^2}. \quad (2.5.13)$$

Полное сечение рассеяния есть

$$\sigma_s = \sigma_s^{\text{к}} + \sigma_s^{\text{нк}} = 4\pi [g^+ b_+^2 + g^- b_-^2]. \quad (2.5.14)$$

Введем по аналогии с длиной когерентного рассеяния (2.5.6) длину некогерентного рассеяния  $b^{\text{нк}} > 0$ , определенную так, что

$$\sigma_s^{\text{нк}} = 4\pi (b_{\text{нк}})^2.$$

Тогда

$$b_{\text{нк}} = |b_+ - b_-| \sqrt{g^+ g^-}. \quad (2.5.15)$$

В более удобной форме записи

$$b_{\text{к}} = \langle b \rangle, \quad \langle b_{\text{нк}} \rangle^2 = \langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2.$$

Полученные результаты верны для пучка неполяризованных нейтронов независимо от того, поляризованы ядра или нет. Если ядра не поляризованы, то можно повторить все выкладки, поменяв при усреднении роль операторов  $\vec{s}$  и  $\vec{S}$ , и получится тот же результат независимо от спинового состояния нейтронов. Но если поляризованы и нейтроны, и ядра, соотношение между когерентным и некогерентным рассеянием меняется. Если, например, ядра и нейтроны поляризованы в одном направлении, то все рассеяние когерентно и характеризуется длиной рассеяния  $b_+$ .

### 2.5.2. Композиционная некогерентность

Бывают случаи, когда химически различные атомы, включая вакансии, занимают структурно одинаковые положения в образце. Бывают случаи, когда абсолютная однородность системы нарушается разновидностью молекул в составе. Эти эффекты приводят к отклонениям длин рассеяния атомов от их средних значений и, следовательно, к не зависящему от  $q$  фону, называемому композиционным некогерентным рассеянием.

Рассмотрим рассеяние молекулой, состоящей из  $N_1$  атомов сорта 1 и  $N_2$  атомов сорта 2. Пусть атомы обоих сортов рассеивают идеально когерентно с

длинами рассеяния  $b_{к,1}$  и  $b_{к,2}$  соответственно. Тогда

$$\bar{b} = \frac{N_1}{N_1 + N_2} b_{к,1} + \frac{N_2}{N_1 + N_2} b_{к,2}, \quad (2.5.16)$$

и

$$\bar{b}^2 = \frac{N_1}{N_1 + N_2} (b_{к,1})^2 + \frac{N_2}{N_1 + N_2} (b_{к,2})^2. \quad (2.5.17)$$

Сечение некогерентного рассеяния из-за композиционного беспорядка будет иметь вид:

$$\sigma_{нк}^{комп} = 4\pi \left[ \bar{b}^2 - (\bar{b})^2 \right] = 4\pi \frac{N_1 N_2}{(N_1 + N_2)^2} (b_{к,1} - b_{к,2})^2. \quad (2.5.18)$$

Итак, композиционная некогерентность происходит из когерентного рассеяния, но проявляется в независимом от  $q$  изотропном фоне, как в некогерентном рассеянии. Полное сечение рассеяния включает в себя композиционную составляющую.

$$\sigma_s = \sigma_k + \sigma_{нк}^{комп}. \quad (2.5.19)$$

### 2.5.3. Общие замечания

Из элементарной оптики известно, что когерентность связана с постоянством фазовых соотношений между волнами от различных рассеивающих центров, а некогерентность – с нерегулярными или случайными фазовыми соотношениями. При когерентном рассеянии складываются амплитуды волн, а при некогерентном рассеянии – квадраты амплитуд, то есть интенсивности. На самом деле тема когерентности в оптике не такая простая, как кажется на первый взгляд. В нейтронной же оптике дело еще сложнее, поскольку некогерентное рассеяние нейтронов больше, чем в оптике света и обусловлено целым рядом причин, характерных именно для рассеяния нейтронов.

При рассмотрении рассеяния от многих ядер, имеют место различные виды некогерентности; одни из них свойственны также свету и рентгеновским лучам, другие не свойственны им. Так, например, одним из типов некогерентности, присущим также рентгеновским лучам, является известное температурное диффузное рассеяние, связанное с тем, что атомы не закреплены жестко в узлах кристаллической решетки. Примером некогерентного рассеяния, свойственного нейтронам, но не присущего рентгеновским лучам, является изотопическое рассеяние, происходящее в тех случаях, когда элемент имеет несколько изотопов с различными амплитудами рассеяния.

Хотя между формулами для изотопного некогерентного рассеяния и для некогерентного рассеяния, зависящего от спина, есть большое сходство, между реальными процессами имеется существенное различие. Как мы видели, при некогерентном рассеянии, зависящем от спина, квантовое состояние рассеивающего ядра и нейтрона действительно меняется, так что это рассеяние

некогерентно в строгом смысле слова. Наоборот, при изотопном некогерентном рассеянии квантовое состояние рассеивающего ядра не меняется; некогерентность является просто результатом смешения двух изотопов. Изотопная некогерентность не является некогерентностью в строгом, микроскопическом смысле, а представляет собой лишь разновидность интерференции, при которой имеется диффузная компонента рассеяния. Правда, интенсивность диффузной компоненты меняется пропорционально квадрату изменения амплитуды, напоминая тем самым некогерентное рассеяние в строгом смысле слова, однако с квантовомеханической точки зрения здесь нет изменения состояния и, следовательно, нельзя говорить о некогерентности.

Еще раз обратим внимание на то, что, как и в обычной оптике, сечение некогерентного рассеяния пропорционально числу рассеивающих центров, а сечение когерентного рассеяния пропорционально квадрату числа рассеивающих центров. Заметим при этом, что при когерентном рассеянии нельзя принципиально указать, на каком именно центре ансамбля происходит рассеяние. При некогерентном рассеянии, когда рассеивающие центры действуют порознь, независимо друг от друга, центр рассеяния может быть указан.

Другое важное отличие когерентного от некогерентного рассеяния состоит в их различной зависимости от угла рассеяния. Сечение некогерентного рассеяния медленных нейтронов практически не зависит от угла рассеяния, так как изотропия, характерная для рассеяния медленного нейтрона на отдельно взятом центре рассеяния, должна иметь место и для совокупности независимо действующих центров. Для когерентного рассеяния характерна очень резкая зависимость сечения от угла рассеяния, что является следствием интерференции падающей и рассеянных волн, распространяющихся в среде.

Мы не упоминали еще о магнитном рассеянии, обусловленном взаимодействием магнитного момента нейтрона с атомными магнитными полями. Магнитное рассеяние еще больше усложняет вопрос о когерентности, потому что оно может быть как когерентным, так и некогерентным.

### Рекомендуемая литература к главе 2

Гуревич И.И., Тарасов Л.В. (1965), *Физика низких энергий*, М.: Наука.

Турчин В.Ф., 1963, *Медленные нейтроны*, М.: Наука.

Ферми Э. (1946), *Лекции по нейтронной физике*. В: Энрико Ферми. Научные труды, в 2-х томах, Ред. Б.Понтекорво, М.: Наука, 1972, т.2, с.236.

Carpenter J.M. and Loong C.-K. (2015), *Elements of slow-neutron scattering*, Cambridge: Univ. Press.

Lovesy S. (1984), *Theory of neutron scattering from condensed matter, Vol. 1 Nuclear scattering*, Oxford: Clarendon press.

### ГЛАВА 3. НЕЙТРОННО-ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ

Во Введении мы обсуждали в общем виде оптические аналогии в свойствах нейтронов. Любые аналогии полезны, однако не надо забывать их ограниченность. Поэтому мы сочли полезным уточнить основные термины. Так, в оптике понятие дифракции связывается с нарушением прямолинейности распространения света, то есть с любым отступлением от геометрической оптики. В теории волн определение дифракции столь же широко – это вся совокупность явлений в волновом поле, возникающих при наличии препятствий распространению волны. Как видим, дифракцией можно назвать все, что наблюдается в экспериментах по упругому рассеянию нейтронов (как и рентгеновского излучения). По этой причине мы будем исходить из определения каналов интерференции нейтронных волн, поскольку дифракция есть результат интерференции.

Длина волны медленных нейтронов соответствует типичным межатомным расстояниям в конденсированном веществе. В этом случае может проявляться когерентность движения атомов (молекул) вещества, которая будет приводить к интерференции когерентно рассеянных волн. В конденсированном веществе интерференция нейтронных волн, как и в оптике, может происходить как вдоль направления падающего пучка, так и под некоторым углом. В первом случае будут наблюдаться явления преломления и полного отражения нейтронных волн от поверхностей и границ раздела. При этом интерферируют падающая волна и волна, рассеянная на каждом рассеивающем центре строго вперед, а также интерферируют волны, рассеянные вперед от различных рассеивающих центров. При интерференции вдоль направления падающего пучка нет зависимости от атомной структуры образца, поскольку результат интерференции строго вперед, а тем более падающей и рассеянной волн, не зависит от взаимного расположения рассеивающих центров. В частности, эффекты преломления и полного отражения нейтронов наблюдаются не только в конденсированном веществе, но и в газах. Этот случай интерференции соответствует геометрической оптике.

Во втором случае интерференции – под углом к направлению падающего пучка, наблюдается дифракция. В этом случае будет сильная зависимость от деталей атомной структуры, которая проявляется в различии интерференционной картины рассеянных под разными углами нейтронных волн. Для дифракции важно соотношение длины волны нейтронов и размера рассеивателей. Если длина волны по величине порядка межатомных расстояний в кристалле, то при определенных условиях формируется брэгговская дифракционная картина. В некристаллических системах для наблюдения областей ближнего порядка требуются соответствующие длины волн, что реализуется в экспериментах по малоугловому рассеянию. В газах из одноатомных молекул дифракция не наблюдается.

В оптике различают два типа дифракции: в параллельных лучах – дифракция Фраунгофера, в противном случае – дифракция Френеля. В нашем случае согласно геометрии рассеяния (гл. 2, рис. 2.3.1), когда источник и детектор расположены далеко (формально на бесконечности) от мишени, все рассматриваемые типы упругого рассеяния в оптической терминологии относятся к дифракции Фраунгофера. В нейтронной оптике дифракцию Френеля наблюдают в специально поставленных экспериментах, которые интерпретируются с помощью динамической теории дифракции [Sears, 1989]. Рассмотрение этих вопросов выходит за рамки нашего изложения.

В данной главе мы рассмотрим интерференционные явления при упругом когерентном рассеянии в рамках феноменологической теории, изложенной в предыдущей главе.

### § 3.1. Оптический потенциал

В 1944 г. Э.Ферми и В.Зин наблюдали [Fermi and Zinn, 1946] явление отражения нейтронов от поверхности не по Брэггу, а в обычном смысле. Эти исследования получили развитие в связи с задачами определения длин рассеяния. Когда пучок тепловых нейтронов при скользющем падении падает на образец, он рассеивается на атомных ядрах, в результате чего возникают вторичные волны, когерентное сложение которых определяет при определенном угле падения преломленную и отраженную волны. Такой же процесс происходит и в случае фотонов. В обоих случаях в результате взаимодействия длина волны падающего пучка  $\lambda_0$  изменяется в среде на некоторое значение  $\lambda_1$ . В случае отсутствия поглощения отношение:

$$n = \frac{\lambda_0}{\lambda_1} = \frac{k_1}{k_0}, \quad \lambda = \frac{2\pi}{|\vec{k}|} = \frac{h}{mv} \quad (3.1.1)$$

играет роль *показателя (коэффициента) преломления*. Преломленная волна, как и падающая может быть описана с хорошей точностью плоской волной, но с измененным волновым вектором.

Длина волны нейтрона обратно пропорциональна скорости, поэтому выражение для показателя преломления можно переписать в виде:

$$n = \frac{v_1}{v_0} = \frac{\cos \alpha}{\cos \psi}, \quad (3.1.2)$$

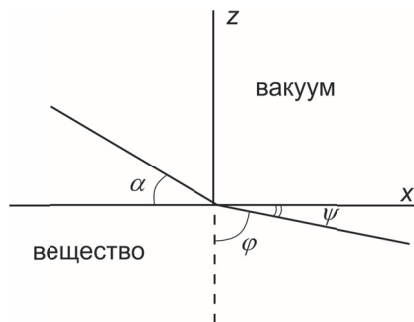
где  $v_0$  – скорость падающего нейтрона,  $v_1$  – скорость нейтрона после преломления нейтронной волны. Угол  $\alpha$  – угол скольжения между падающим нейтронным лучом и поверхностью, угол  $\psi$  – угол преломления (рис. 3.1.1).

Заметим, что в (3.1.2) фигурируют групповые скорости волн де Бройля, равные механическим скоростям нейтрона, а не фазовые скорости, как в световой оптике. В квантовой теории света исходят из волновой картины, дополняя ее корпускулярной введением представления об импульсе и энергии кванта света.

Для частиц исходным пунктом является классическое представление о движении частиц, которое дополняется представлениями волновой теории, связывая с движением частицы волновой процесс с определенной частотой и длиной волны. Частицам нельзя приписать определенную фазовую скорость из-за нелинейного характера соотношения частоты и волнового вектора [Блохинцев, 2014, § 7].

Формула (3.1.2) есть закон преломления нейтронных волн, аналогичный закону Снеллиуса в световой оптике.

Преломление нейтронных волн может быть описано как распространение плоской волны в однородной среде, в которой нейтрон обладает постоянной потенциальной энергией  $U$ , получающейся усреднением эффективных полей всех частиц среды по ее объему  $V$  [Ландау и Лифшиц, 2001, т. 3, § 142]. Под действием потенциала  $U$  нейтроны отклоняются от своего первоначального направления. Это отклонение будет направлено в сторону нормали к поверхности раздела сред, если скорость  $v_1$  в среде больше скорости в вакууме. В обратном случае пучок нейтронов будет отклоняться от нормали к поверхности (рис. 3.1.1). При переходе из одной среды в другую продольная (вдоль поверхности) составляющая скорости нейтрона не изменяется, так как силы со стороны среды в продольном направлении взаимно уравниваются. Изменяется только поперечная составляющая, которая для потенциала отталкивания ( $U > 0$ ) уменьшается, а для потенциала притяжения ( $U < 0$ ) увеличивается.



**Рис. 3.1.1.** Преломление нейтронных волн при прохождении из вакуума в среду.

Связь между показателем преломления (3.1.1) и потенциалом взаимодействия нейтронов с веществом (полем  $U$ ) следует из у. Ш. (2.1.1). Так как  $k_1^2 = 2m(E - U)/\hbar^2$  и  $k_0^2 = 2mE/\hbar^2$ , то из (3.1.1) получаем:

$$n^2 = \left( \frac{k_1}{k_0} \right)^2 = \frac{E - U}{E} = 1 - \frac{U}{E}. \quad (3.1.3)$$

В уравнениях (3.1.1) и (3.1.3) сочетаются волновое и корпускулярное представления<sup>\*)</sup>, так как в них входит как энергия частицы  $E$ , так и волновое число  $k$ .

<sup>\*)</sup> См. обсуждение этого вопроса во Введении.



Как видно из соотношения (3.1.3) потенциал  $U$  полностью характеризует оптическую среду для нейтрона, поэтому он получил название *оптического потенциала*.

Как уже было отмечено в начале главы, преломление нейтронных волн обусловлено интерференцией вдоль направления падающего пучка (рассеяние вперед,  $\theta=0$ ), которая не зависит от атомной структуры среды. Поэтому подразумевается, что потенциал взаимодействия  $U$  в формуле (3.1.3) является усредненным потенциалом среды. В приближении Ферми (2.3.20) для одноатомной среды он имеет вид:

$$V = \sum_{i=1}^N V_i(\vec{r} - \vec{r}_i) = \int \frac{2\pi\hbar^2}{m} \frac{N}{V} b \delta(\vec{r} - \vec{r}') d^3r' = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \frac{N}{V} b, \quad (3.1.4)$$

где  $N$  – число ядер мишени. Подставляя (3.1.4) в (3.1.3), получаем

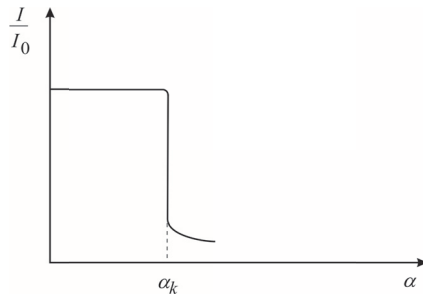
$$n^2 = 1 - \frac{\lambda^2 N}{\pi V} b \Rightarrow n \approx 1 - \frac{\lambda^2 N}{2\pi V} b. \quad (3.1.5)$$

Здесь принято во внимание, что показатель преломления для нейтронов для большинства элементов близок к единице: отклонение составляет от  $10^{-3}$  до  $10^{-6}$ . В этом легко убедиться, подставив значения длин рассеяния в формулу (3.1.5). В результате отклонение нейтронного пучка в среде не превышает нескольких угловых минут. Отметим, что при рассеянии вперед отдачей ядра можно пренебречь, это означает, что ядра можно считать жестко связанными и длину рассеяния можно отождествить с когерентной длиной рассеяния на химически связанном коллективе ядер.

В приведенном нами простом выводе *формулы Ферми* (3.1.5) рассматривается движение нейтрона в потенциальном поле, близкое к классической картине движения. Но для нахождения связи между потенциалом взаимодействия и сечением рассеяния используются свойства волновой функции.

Формула (3.1.5) впервые была приведена в отчете Э.Ферми и В.Зина о работе, выполненной в 1944 г. на новом тяжеловодном реакторе CP-3 в Чикаго [Ферми, 1972, т. 2, с. 226], в несколько другом виде: вместо длины рассеяния авторы использовали  $\sqrt{\sigma_s/4\pi}$  (ср. 2.2.10), при этом они ограничились замечанием: «Из теоретических соображений следует». В виде (3.1.5) эта формула приведена тоже без вывода в статье [Fermi and Marshall, 1947]. Вывод формулы Ферми с использованием псевдопотенциала Ферми приведен в работе [Ахиезер, Померанчук, 1948].

Отметим здесь одно важное обстоятельство. Коэффициентом преломления можно пользоваться только в случае среды с резкой границей. Если же размытые границы порядка или больше, чем следующая из выражения для коэффициента преломления глубина проникания нейтронов в среду, надо решать соответствующее уравнение Шредингера.



**Рис. 3.1.2.** Зависимость отношения интенсивностей отраженных ( $I$ ) и падающих ( $I_0$ ) нейтронов от угла скольжения для моноэнергетических нейтронов.

Поскольку для большинства веществ  $b$  положительна, то в большинстве случаев  $n$  меньше единицы, причем для тепловых нейтронов это отличие не превышает  $10^{-5}$ . Поэтому аналогично рентгеновской оптике возможно *полное отражение*. Действительно, если угол скольжения  $\alpha$  (рис. 3.1.1) станет меньше некоторого критического угла  $\alpha_k$ , то нейтронная волна не будет проникать в вещество, но будет полностью отражаться от ее поверхности, как показано на рис. 3.1.2.

Если пучок нейтронов не моноэнергетический, то распределение интенсивностей будет не ступенькой, а плавным, как на рис. 3.2.3. Из закона Снеллиуса (3.1.2) следует:  $\cos \alpha_k = n \cos \psi_k = n$ , т.к.  $\psi_k = 0$ . Так как для тепловых нейтронов  $n \approx 1$ , то угол  $\alpha_k$  мал и косинус можно разложить в ряд по степеням  $\alpha_k$ . В результате получаем

$$\alpha_k \approx \sqrt{2(1-n)}.$$

С учетом формулы Ферми (3.1.5)

$$\alpha_k = \lambda \sqrt{\frac{Nb_{\text{кор}}}{V\pi}}. \quad (3.1.6)$$

Явление полного отражения используется, наряду с дифракционными экспериментами, для прямого измерения, согласно (3.1.6), длин ядерного рассеяния (величины и знака) и, следовательно, сечений когерентного рассеяния. На этих измерениях, по существу, основано использование рассеяния нейтронов, поскольку современное состояние теории ядерных сил не позволяет вычислить эти величины.

Еще одна особенность преломления нейтронов состоит, как видно из (3.1.5), в его зависимости от длины волны. При увеличении  $\lambda$  критический угол скольжения увеличивается. Этот факт широко используется в настоящее время при формировании нейтронных каналов – каналов из хорошо отражающих материалов, по которым благодаря полному отражению нейтроны можно проводить на большие расстояния практически без потерь. Эффективность нейтронных каналов возрастает с увеличением  $\lambda$ .

При увеличении  $\lambda$  до некоторого граничного значения  $\lambda_{\text{гр}}$  возникает качественно новое явление. При  $\lambda > \lambda_{\text{гр}}$  показатель преломления может

обратиться в ноль и даже стать мнимым, что означает, что нейтронная волна не может проникать в вещество. Следовательно, она отражается от поверхности при любом угле падения. Нейтроны с  $\lambda > \lambda_{\text{тр}}$  называют ультрахолодными. Такие нейтроны, помещенные в замкнутый объем, можно хранить длительное время (теоретически до времени их распада, которое равно примерно 15 мин), что дает возможность изучения фундаментальных свойств нейтрона (§ 1.3).

## § 3.2. Рассеяние при скользящем падении

### 3.2.1. Зеркальное отражение

Начиная с 1980-х годов, когда появились в достаточном количестве источники нейтронов с большим потоком, получило распространение новое направление в рассеянии нейтронов – *нейтронная рефлектометрия* (гл. 15), основанная на рассеянии при скользящем падении и использовании явлений полного отражения и преломления.

Основу рефлектометрии, как метода исследования тонких пленок, многослойных структур и приповерхностных явлений, составляет эффект *зеркального отражения* от плоских поверхностей раздела между различными средами, рассматриваемыми, как сплошные и отвлекаясь от их атомной структуры. Приближение сплошной среды оправдано, когда волновой вектор  $\vec{k}$ , переданный при рассеянии, мал по сравнению обратными межатомными расстояниями  $a_0$ . Эти расстояния в твёрдых телах и жидкостях обычно сравнимы с длинами волн  $\lambda$  тепловых или холодных нейтронов, так что область малых переданных импульсов  $|\vec{k}| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \frac{\theta}{2} \ll a_0^{-1}$  достижима в измерениях рассеяния достаточно длинноволновых нейтронов под малыми углами  $\theta$ . Однако в отличие от обычного метода малоуглового рассеяния нейтронов, широко применяемым для изучения крупномасштабных неоднородностей сплошных сред, малым в рефлектометрии предполагается не только угол рассеяния  $\theta \ll 1$ , но и скользящие углы падения на поверхность,  $\alpha_0 \ll 1$ , и отражения от неё,  $\alpha_1 = \theta - \alpha_0 \ll 1$ . Согласно определению зеркального отражения угол падения равен углу отражения:  $\alpha_0 = \alpha_1 = \alpha$ . При этом угол рассеяния  $\theta = 2\alpha$ , а длина вектора  $\vec{k}$ , направленного строго перпендикулярно к поверхности, может изменяться путем вариации угла падения, либо длины волны нейтрона. Таким образом, зависимость отражённого потока, измеряемая экспериментально в широкой области изменения величины  $|\vec{k}|$ , включая область полного внешнего отражения, где отраженный поток равен падающему, позволяет восстановить профиль оптического потенциала.

Рассмотрим плоскость в качестве раздела двух сред. Пусть на эту границу из воздуха падает волна в плоскости  $YZ$  (рис. 3.2.1), т.е.  $\exp(i\vec{k}\vec{r}) = \exp(ik(y \cos \alpha + z \sin \alpha))$ , тогда решением уравнения у.Ш. (2.2.1) будет

$$\psi(\vec{r}) = \exp(ik(y \cos \alpha + z \sin \alpha)) + r_0 \exp(ik(y \cos \alpha - z \sin \alpha)), \quad (3.2.1)$$

где первый член есть падающая волна, а второй – отраженная волна с амплитудой  $r_0$ . В соответствии с граничным условием, для любых значений  $x$  и  $y$  справедливо

$$\begin{aligned} \psi(x, y, z = -d^+) &= \psi_{\text{air}}(x, y, z = -d^-) = \\ &= \exp(iky \cos \alpha) (\exp(ikd \sin \alpha) + \exp(ikd \sin \alpha)), \end{aligned} \quad (3.2.2)$$

поэтому волновая функция должна иметь вид

$$\psi(\vec{r}) = \exp(iky \cos \alpha) \psi(z). \quad (3.2.3)$$

Для зависящей только от координат  $z$  части волновой функции имеем уже одномерное у.Ш. (уравнение Гельмгольца)

$$\frac{d^2 \psi(z)}{dz^2} + (k_0^2 - 4\pi\rho(z)) \psi(z) = 0, \quad (3.2.4)$$

где  $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda \sin \alpha}$ ,  $\rho(z)$  – плотность длины рассеяния (ПДР), которая в приближении для псевдопотенциала Ферми (2.3.20) определяется как

$$\rho(z) = \sum_i b_i \delta(z - R_i). \quad (3.2.5)$$

Запишем граничные условия для у. Ш.:

$$\psi(z^+) = \psi(z^-), \quad \psi'(z^+) = \psi'(z^-).$$

(3.2.6)

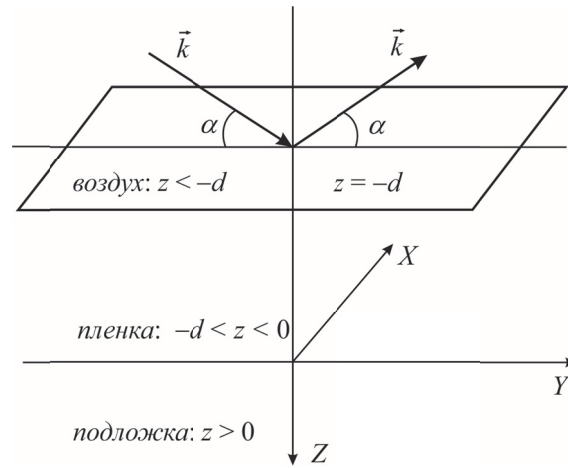


Рис. 3.2.1. Схематическое изображение зеркального отражения.

*Закон зеркального отражения*, т.е. равенство углов падения и отражения от потенциала  $V(z)$ , независящего от времени и координат  $X, Y$ , является следствием двух законов сохранения [Игнатович, 2006]: кинетической энергии нейтронов и проекции их волнового вектора на отражающую плоскость, в сочетании с принципом суперпозиции распространения нейтронной волны параллельно и перпендикулярно поверхности. Первый из законов сохранения связан с инвариантностью системы относительно сдвига во времени и предполагает, что в результате взаимодействия не происходит обмена энергией между нейтроном и образцом. Иными словами, зеркальное отражение есть абсолютно упругий процесс рассеяния, в результате которого энергии отражённых,  $E_1 = \frac{\hbar^2 k_1^2}{2m}$ , и падающих,  $E_0 = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m}$ , нейтронов равны друг другу:  $E_0 = E_1 = E$ , и длины волновых векторов  $k_0 = k_1 = k$  не изменяются. Вторым законом сохранения следует из инвариантности идеально плоской (формально бесконечной) поверхности, ограничивающей однородную среду, относительно ее сдвига параллельно самой себе. Поэтому тангенциальная компонента импульса нейтрона сохраняется, так что проекции  $\vec{k}_1^{\parallel} = \vec{k}_0^{\parallel}$  волновых векторов на отражающую плоскость остаются неизменными, передачи компоненты импульса нейтрона вдоль поверхности не происходит, и тангенциальная проекция  $\vec{q}_{\parallel} = \vec{k}_1^{\parallel} - \vec{k}_0^{\parallel} = 0$  переданного волнового вектора  $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$  строго равна нулю. Соответственно, при зеркальном отражении распространение нейтронной волны вдоль поверхности остается свободным, т.е. неизменной остается не только абсолютная величина вектора  $k = |\vec{k}|$ , но и его тангенциальной проекции:  $k_{\parallel} = |\vec{k}_{\parallel}| = |\vec{k}_0^{\parallel}|$ . Отсюда, учитывая тот факт, что  $k_1^{\parallel} = k \cos \alpha_1$  и  $k_0^{\parallel} = k \cos \alpha_0$ , с необходимостью следует равенство:  $\cos \alpha_1 = \cos \alpha_0$ , т.е.  $\alpha_1 = \alpha_0$ , или  $\alpha_1 = -\alpha_0$ . Первое из этих равенств и определяет зеркальное отражение, при котором энергия и тангенциальная проекция импульса нейтрона сохраняются. В то же время, в силу нарушения однородности пространства в направлении нормали к поверхности перпендикулярные поверхности компоненты волнового вектора  $k_0^{\perp} \neq k_1^{\perp}$ , где  $k_0^{\perp} = k_0^z = \frac{2\pi}{\lambda} \sin \alpha_0$ ,  $k_1^{\perp} = k_1^z = \frac{2\pi}{\lambda} \sin \alpha_1$ . Таким образом, при зеркальном отражении  $\alpha_1 = \alpha_0$ ,  $k_1^{\perp} = k_0^{\perp}$ , и переданный волновой вектор имеет нормальную проекцию  $q_{\perp} = q_z = 2k_0^{\perp}$ , в то время как его тангенциальная компонента  $\vec{q}_{\parallel} = 0$ .

Второе уравнение,  $\alpha_1 = -\alpha_0$ , не имеет области применимости, т.к. должно отвечать преломлению, или рефракции, нейтронной волны внутрь среды, где согласно с законом сохранения полной энергии часть её кинетической энергии превращается в потенциальную энергию взаимодействия нейтрона со средой. В

результате длина «преломлённого» волнового вектора  $k_s = \hbar^{-1} \sqrt{2m(E-V)} \neq k$ , в то время как его тангенциальная проекция  $k_s^{\parallel} = k_{\parallel}$ , как и прежде, сохраняется. Однако теперь, этот закон сохранения приводит к *закону преломления*:  $k_s \cos \alpha_s = k \cos \alpha_0$ , определяющему угол преломления  $\alpha_s$ . Следует подчеркнуть, что закон преломления, как и зеркального отражения, соответствует *абсолютно упругому* процессу рассеяния, при котором нейтрон не может передать энергию среде макроскопических размеров (ср. § 2.1).

### 3.2.2. Формулы Френеля

Рассмотрим отражение от границы полубесконечной однородной среды. В дальнейшем такая среда будет служить моделью подложки, на которую нанесены слои других материалов. Считаем, что ПДР в воздухе равна нулю, а на границе воздух – среда претерпевает скачок до постоянного значения  $\rho_s$  в среде (рис. 3.2.2). Если на границу раздела сред падает плоская волна  $\exp(ik_0 z)$  с единичной интенсивностью, то амплитуда отраженной волны  $R$  называется *амплитудой отражения*, а амплитуда прошедшей волны  $T$  – *амплитудой пропускания* (преломления).

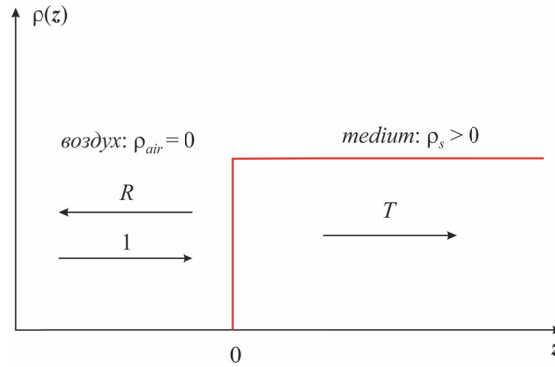


Рис. 3.2.2. Профиль плотности длины рассеяния (оптического потенциала).

Волновые уравнения в воздухе и среде имеют вид, соответственно

$$\psi''(z) + k_0^2 \psi(z) = 0, \quad z \leq 0, \quad (3.2.7a)$$

$$\psi''(z) + k_s^2 \psi(z) = 0, \quad z \geq 0, \quad (3.2.7b)$$

где волновые числа  $k_0$  и  $k_s$ , соответственно, в воздухе и среде есть  $k_0 = 2\pi/\lambda \cdot \sin \alpha$  и  $k_s = \sqrt{k_0^2 - 4\pi\rho_s}$ . Решение уравнений (3.2.7a), (3.2.7b) дает  $\psi(z) = \exp(ik_0 z) + R \cdot \exp(-ik_0 z)$ ,  $z \leq 0$ , в воздухе,  $\psi(z) = T \cdot \exp(ik_s z)$ ,  $z \geq 0$ , в среде. Амплитуды отражения  $R$  и пропускания  $T$  могут быть определены из граничных условий, которые в данном случае имеют вид

$$1 + R = T, \quad (3.2.8)$$

$$k_0(1-R) = k_s T. \quad (3.2.9)$$

Отсюда получаем формулы Френеля

$$R = \frac{k_0 - k_s}{k_0 + k_s}, \quad (3.2.10)$$

$$T = \frac{2k_0}{k_0 + k_s}. \quad (3.2.11)$$

В большинстве случаев для нейтронов (и всегда для рентгеновского излучения) ПДР положительна:  $\rho_s > 0$ . В этом случае  $k_s = \sqrt{k_0^2 - 4\pi\rho_s} < k_0$  и обращается в ноль, когда  $k_0 = \sqrt{4\pi\rho_s}$ . Значение волнового числа

$$k_c = \sqrt{4\pi\rho_s} \quad (3.2.12)$$

называется критическим, при этом значении  $k_s = 0$ , а  $R=1$  для всех  $k_0$ :  $0 \leq k_0 \leq k_c$  (полное отражение). В эксперименте всегда измеряется коэффициент отражения – квадрат модуля  $|R|^2$  (reflectivity) амплитуды  $R$  (reflectance). В предположении  $\rho_s = 2.865 \times 10^{-6} \text{ \AA}^{-2}$  на рис. 3.2.3 показано поведение  $|R|^2$  в зависимости от  $k_0$ . Для сравнения показан также случай  $\rho_s < 0$  (например,  $\text{H}_2\text{O}$ ) – полного отражения нет.

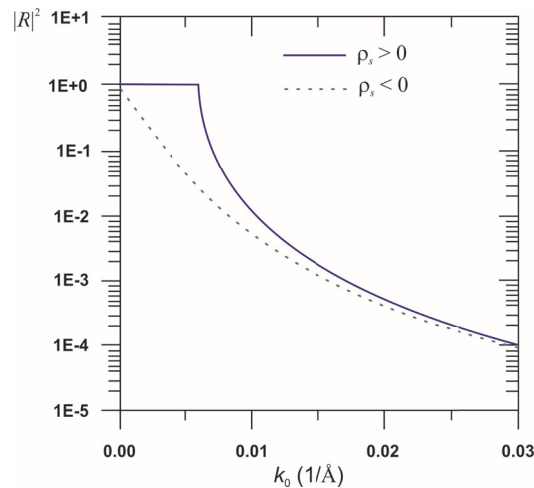


Рис. 3.2.3. Отражение от полубесконечной однородной среды.

При больших значениях  $q = 2k_0$  можно получить асимптотическую зависимость для (3.2.10), учитывая, что  $k_s \approx k_0 \left\{ 1 - 1/2(4\pi\rho_s/k_0^2) \right\}$ : Тогда, как легко видеть,

$$R \approx \frac{\pi \rho_s}{k_0^2}, \quad |R|^2 \approx \frac{\pi^2 |\rho_s|^2}{k_0^4}. \quad (3.2.13)$$

Эта зависимость известна как *закон Порода*  $q^{-4}$ . Можно отметить, что этот закон остается справедливым даже для произвольного профиля ПДР.

Поскольку реальные среды всегда обладают поглощением, очень важно рассмотреть его влияние на результаты рефлектометрического эксперимента. Ясно, что из-за поглощения уже не будет полного отражения ни при каких значениях волнового числа  $k_0$ , а коэффициент отражения всегда будет меньше единицы. Для расчета зависимости  $|R|^2$  от  $k_0$  необходимо ввести отрицательную мнимую часть ПДР, отвечающую поглощению:

$$\rho_s = \text{Re}\{\rho_s\} + i \text{Im}\{\rho_s\}.$$

В этом случае формулы (3.2.10) и (3.2.11) остаются по-прежнему справедливыми, но зависимость от  $\rho_s$  (от мнимой и вещественной частей) становится сложнее.

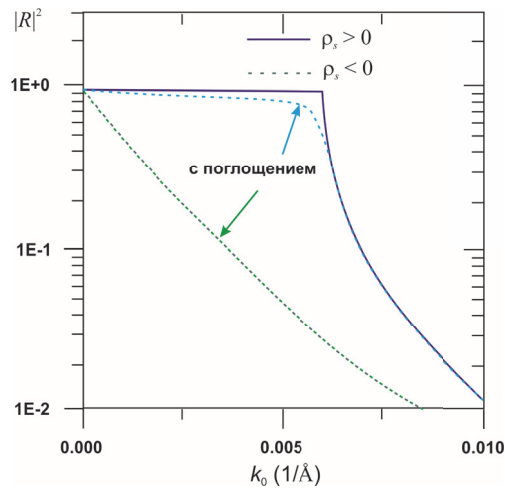


Рис. 3.2.4. Отражение от полубесконечной поверхности с учетом поглощения.

Окончательный результат, полученный в прежних условиях с добавлением 5% мнимой добавки (что близко к реальным ситуациям), представлен на рис. 3.2.4. Видно, что наибольший эффект поглощение вызывает в случае положительной ПДР: плато полного отражения переходит в гладкую зависимость, а резкий переход в критической точке замирает.

### Отражение от пленки на подложке

Рассмотрим простейшую систему, когда слой материала толщиной  $d$  с постоянной ПДР нанесен на подложку, которая также характеризуется постоянной, но другой ПДР (рис. 3.2.5). Тогда, если волновые числа  $k_0$ ,  $k$ , и  $k_s$



отнесены, соответственно, к воздуху, пленке и подложке, то уравнения Гельмгольца для каждой среды имеют вид:

$$\psi''(z) + k_0^2 \psi(z) = 0, \quad z \leq -d, \text{ в воздухе,} \quad (3.2.14)$$

$$\psi''(z) + k \psi(z) = 0, \quad -d \leq z \leq 0, \text{ в пленке,} \quad (3.2.15)$$

$$\psi''(z) + k_s^2 \psi(z) = 0, \quad z \geq 0, \text{ в подложке,} \quad (3.2.16)$$

а их решения (волновые функции):

$$\psi(z) = \exp(ik_0 z) + R \cdot \exp(-ik_0 z), \quad z \leq -d, \text{ в воздухе,} \quad (3.2.17)$$

$$\psi(z) = A [\exp(ikz) + R \cdot \exp(-ikz)], \quad -d \leq z \leq 0, \text{ в пленке,} \quad (3.2.18)$$

$$\psi(z) = T \cdot \exp(ik_s z), \quad z \geq 0, \text{ в подложке.} \quad (3.2.19)$$

С помощью граничных условий находят искомые константы:

$$R = \frac{-R_l + R_r \exp(2ikd)}{1 - R_l R_r \exp(2ikd)} \exp(2ik_0 d), \quad T = \frac{T_l T_r \exp(2i(k - k_0)d)}{1 - R_l R_r \exp(2ikd)}, \quad A = \frac{T}{T_r}, \quad (3.2.20)$$

где

$$R_r = \frac{k_0 - k_s}{k_0 + k_s}, \quad R_l = \frac{k - k_0}{k + k_0}, \quad T = \frac{2k}{k + k_s}, \quad T_l = \frac{2k_0}{k + k_0}. \quad (3.2.21)$$

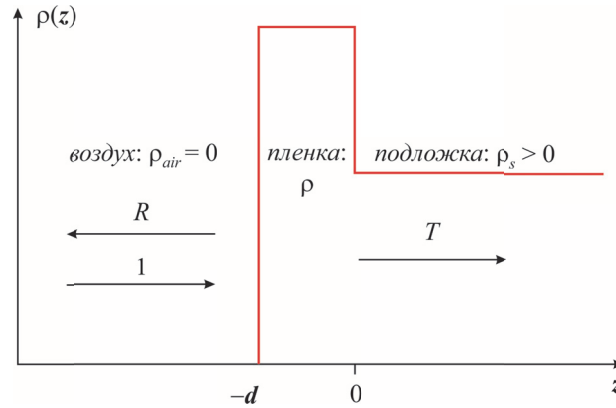


Рис. 3.2.5. Плотность длины рассеяния (оптический потенциал) для пленки на подложке.

Как видно из (3.2.20, 3.2.21), даже без детального анализа, что зависимость  $|R|^2$  есть осциллирующая функция от  $k_0$ . Эти осцилляции называют «бахромой Киссига». На рис. 3.2.6 построена эта зависимость для следующих выбранных параметров:  $\rho = 2.865 \times 10^{-6} \text{ \AA}^{-2}$ ,  $\rho_s = 9.549 \times 10^{-6} \text{ \AA}^{-2}$ ,  $d = 300 \text{ \AA}$ . Интерес представляет поведение этой зависимости при больших  $k_0$ :

$$|R|^2 \approx \frac{\pi^2}{k_0^4} \left[ \rho^2 + (\rho_s - \rho)^2 + 2\rho(\rho_s - \rho) \cos(2k_0 d) \right], \quad (3.2.22)$$

поскольку явным образом позволяет установить простую связь между периодом осцилляций  $\Delta k_0$  и толщиной пленки  $d$ :

$$d \approx \pi / \Delta k_0. \quad (3.2.23)$$

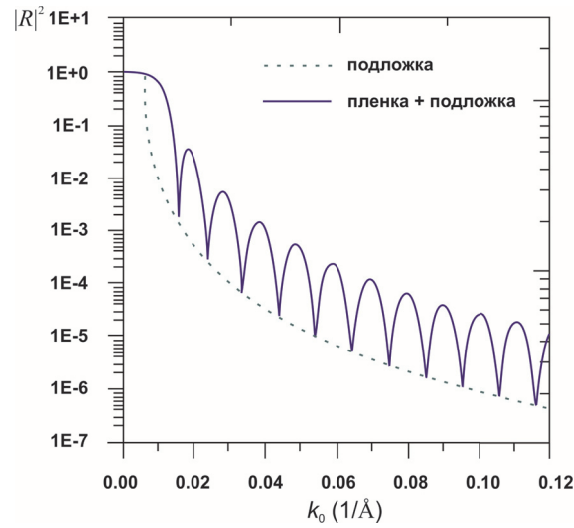


Рис. 3.2.6. Отражение от пленки на подложке.

Таким образом, по экспериментальным кривым, подобным на рис. 3.2.6, становится возможным установить толщину реальных пленок. Опять же заметим, что огибающая осциллирующей кривой спадает по универсальному закону  $q^{-4}$  и может служить для определения  $\rho_s$  (ср. с рис. 3.2.3).

Амплитуда осцилляций не зависит от толщины пленки  $d$ , период осцилляций уменьшается при увеличении  $d$ .

### Отражение от многослойных структур

Рассмотрим систему из  $N$  пленок, которая нанесена на подложку. Каждая  $i$ -ая пленка имеет свою толщину  $\Delta z_i$ , а граница раздела между  $i$  и  $i+1$  пленками имеет координату  $z = z_i$ . Кроме самостоятельного значения такая система при большом  $N$  может хорошо аппроксимировать и какое-либо непрерывное распределение ПДР.

Анализ проводится аналогичным предыдущему случаю образом. В результате получаются простые, но громоздкие формулы для рекуррентных соотношений.

Общие закономерности в отношении абсолютных значений ПДР пленок, влияния поглощения, периодов осцилляций остаются теми же самыми. Однако анализ реальных данных для таких структур (например, определение толщин пленок), конечно же, усложняется. Восстановление параметров таких

многослойных структур производится в рамках обычных методов решения обратных задач – методом подгонки модельных расчетов к экспериментальным данным. Следует заметить, однако, что восстановление ПДР многослойных структур с известными толщинами пленок в общем случае не единственно, хотя задача определения толщин пленок при известных ПДР имеет единственное решение. На практике, как правило, интерес представляет первая задача.

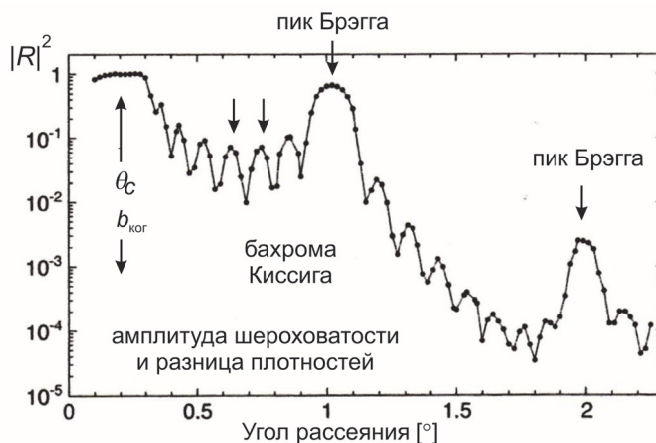


Рис. 3.2.7. Отражение от многослойной структуры  $8 \times [\text{Ni}(7\text{нм})/\text{Ti}(7\text{нм})]$  на стекле.  $\lambda = 4.7 \text{ \AA}$ . Видны пики Брэгга и бахрома Киссига.

На рис. 3.2.7 показано зеркальное отражение от многослойной структуры, построенной из восьми бислоев  $\text{Ni}(7\text{нм})/\text{Ti}(7\text{нм})$ , напыленных на стекло. Этот рисунок демонстрирует все возможности стандартной рефлектометрии. Видны два брэгговских пика, по которым определяется толщина бислоя  $D = n\pi/q_n$  ( $n$  – порядок пика). Между пиками Брэгга находится *бахрома Киссига*, по которой согласно формуле (3.2.23) можно определить полную толщину пленки. Амплитуда осцилляций дает информацию о шероховатостях и разнице плотностей. Наконец, критический угол  $\theta_c$  (или  $k_c$ ), когда заканчивается полное отражение, определяет длину когерентного рассеяния.

### 3.2.3. Незеркальное рассеяние

В реальных системах абсолютно гладких поверхностей не бывает. Если размытость границ (структурная или магнитная) больше, чем глубина проникновения нейтронов в среду, процессы рассеяния будут размывать картину зеркального отражения. В исследованиях предполагается, что можно разделить зеркальное отражение и незеркальное рассеяние. Если это удастся сделать, то сечение рассеяния при скользящем падении будет состоять из трех слагаемых (§ 15.4):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{зерк.}} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{диф.}} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{МУРН-СП}}, \quad (3.2.24)$$

описывающих соответственно зеркальное отражение, диффузное рассеяние (которое обычно по традиции называют незеркальным, off-specular) и малоугловое рассеяние, которое называют *малоугловым рассеянием при скользящем падении*: МУРН-СП (GISANS, Grazing Incidence Small-Angle Neutron Scattering). В незеркальное рассеяние могут давать, кроме диффузного рассеяния на неоднородностях и другие процессы, например, пространственное расщепление нейтронного пучка в магнитно-неколлинеарных структурах (гл. 7).

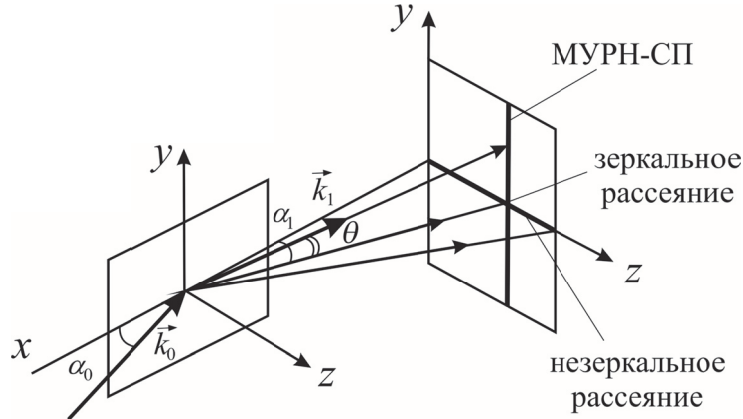


Рис. 3.2.8. Геометрия рассеяния при скользящем падении.

На рис. 3.2.8 показана схема эксперимента при скользящем падении нейтронов на поверхность. Ось  $Oz$  направлена перпендикулярно плоскости  $(x, y)$ , которая является поверхностью исследуемой структуры. Нейтронный пучок в плоскости  $(x, z)$  падает на поверхность образца под малым углом скольжения  $\alpha_i < 1^\circ$ . Здесь  $\vec{k}_0$  – волновой вектор падающего пучка нейтронов,  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  – модуль волнового вектора (или волновое число),  $\lambda$  – длина волны нейтронов. После взаимодействия с образцом нейтроны отражаются от поверхности образца под малым углом скольжения  $\theta$  к плоскости  $(x, z)$  и углом скольжения  $\alpha_i$  к плоскости поверхности образца  $(x, y)$ . Волновой вектор отраженного пучка нейтронов обозначим  $\vec{k}_1$ , тогда вектор рассеяния равен  $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$ . Будем рассматривать случай упругого рассеяния нейтронов, когда модуль волнового вектора не изменяется:  $k_1 = k_0 = k = \frac{2\pi}{\lambda}$ .

Вектор рассеяния имеет следующие компоненты:

$$q = \begin{cases} q_x = \frac{2\pi}{\lambda}(\cos \alpha_1 \cos \theta - \cos \alpha_0) \\ q_y = \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta \\ q_z = \frac{2\pi}{\lambda}(\sin \alpha_1 + \sin \alpha_0) \end{cases} \quad (3.2.25)$$

Углы скольжения малы  $\alpha, \theta \ll 1$ , поэтому можно воспользоваться приближенными выражениями  $\sin \alpha \approx \alpha$  и  $\cos \alpha \approx 1 - \alpha^2/2$ :

$$q = \begin{cases} q_x = \frac{\pi}{\lambda}(\alpha_0^2 - \alpha_1^2 - \theta^2) \\ q_y = \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta \\ q_z = \frac{2\pi}{\lambda}(\alpha_1 + \alpha_0) \end{cases} \quad (3.2.26)$$

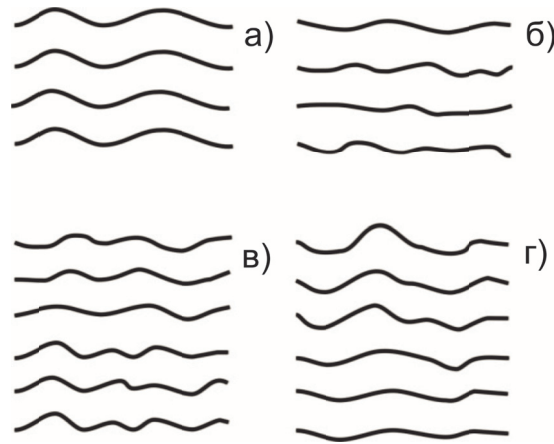
Размеры неоднородностей в плоскости, которые доступны для исследования, определяются условиями  $\xi_x \approx 2\pi/q_x$  и  $\xi_y \approx 2\pi/q_y$ . Из выражения (3.2.26) видно, что величина вектора рассеяния в направлении  $x$  определяется квадратичной зависимостью от углов скольжения, а в направлении  $y$  – линейной зависимостью от угла скольжения. Поэтому доступные для исследования размеры неоднородностей в направлениях  $x$  и  $y$  находятся в разных интервалах.

Плоскость регистрации нейтронов ( $y, z$ ) перпендикулярна плоскости падения начального пучка и поверхности образца (рис. 3.2.8). Если поверхность имеет неоднородности вдоль  $y$ , то наблюдается малоугловое рассеяние нейтронов при скользящем падении. Плоскость рассеяния при  $\theta \neq 0$  пересекает плоскость регистрации нейтронов по линии МУРН-СП, которая параллельна поверхности образца и перпендикулярна плоскости ( $x, z$ ). Методом МУРН-СП можно определить малые неоднородности в интервале  $3 \text{ нм} < \xi_y < 100 \text{ нм}$  [см., например, Lauter et al., 2012].

Если слоистая структура однородна в плоскости ( $x, y$ ), то  $\theta = 0$ , и при углах скольжения  $\alpha_1 = \alpha_0$  происходит зеркальное отражение нейтронов. Экспериментально измеряется отношение интенсивности зеркально отраженного пучка нейтронов к интенсивности падающего на образец пучка. На этом основан классический метод нейтронной рефлектометрии. Доступные для исследования размеры неоднородностей в перпендикулярном слоям направлении  $\xi_z \approx 2\pi/q_z$  составляют от 1 до 200 нм.

Если же слоистая структура имеет неоднородности в плоскости ( $x, y$ ), в направлении  $x$  и однородна в направлении  $y$ , то  $\theta = 0$ , и при углах скольжения  $\alpha_1 \neq \alpha_0$  происходит незеркальное рассеяние нейтронов. Плоскость незеркального рассеяния ( $x, z$ ) пересекает плоскость регистрации нейтронов по линии

незеркального рассеяния, которая перпендикулярна плоскости образца и линии МУРН-СП. Для метода незеркального рассеяния нейтронов доступными являются достаточно большие размеры неоднородностей  $0.6 \text{ мкм} < \xi_x < 60 \text{ мкм}$ .



**Рис. 3.2.9.** Схематическое представление межслойной шероховатости в многослойных структурах: а) – полностью скоррелированная, б) – полностью не скоррелированная, в) – частично скоррелированная, г) – кумулятивная шероховатость. В случае в) – величина  $\sigma^2$  не меняется от слоя к слою.

Характер шероховатости границ многослойной среды можно разделить на несколько основных типов. Многослойная структура, с полностью скоррелированными границами, то есть такими, что форма границ полностью повторяется от слоя к слою, показана на рис. 3.2.9а. Шероховатость такого типа называется конформной. Увеличивающаяся (или уменьшающаяся) от слоя к слою шероховатость, известна под названием кумулятивной (рис. 3.2.9г). Случай, когда флуктуации границ данного слоя полностью независимы от предыдущего, представлен на рис. 3.2.9б. В большинстве случаев, описание реальной шероховатости находится между этими предельными случаями.

Влияние шероховатостей на коэффициент отражения в стандартной рефлектометрии учитывается с помощью фактора Дебая-Валера или фактора Крос-Нево, моделирующих размытие границы раздела, соответственно,

$$G_{\text{д-в}} = \exp(-q_z^2 \sigma^2 / 2), \quad G_{\text{к-н}} = \exp(-q_z q_z' \sigma^2 / 2),$$

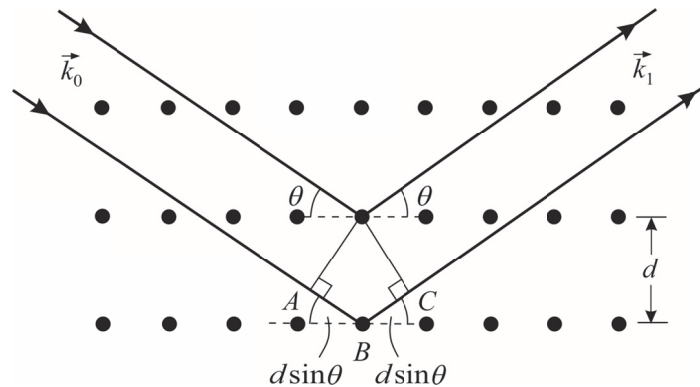
где  $q_z$  – волновой вектор рассеяния на воздухе,  $q_z'$  – в веществе,  $\sigma^2$  – среднеквадратичное отклонение координат от плоскости границы раздела. В такой упрощенной схеме нет разделения различных вкладов в незеркальное рассеяние. Корректный расчет незеркального рассеяния представляет собой довольно сложную процедуру, доступную пока еще далеко не всем научным группам [см. § 15.4].

### § 3.3. Дифракция в трехмерных периодических структурах

При взаимодействии нейтронов с трехмерными периодическими структурами с упорядоченно расположенными рассеивателями (такие структуры моделируют идеальные атомные кристаллы) может возникнуть брэгговская дифракция, которая состоит в том, что при определенных энергиях нейтронов когерентно рассеянные отдельными атомами под разными углами нейтронные волны испытывают интерференцию, в результате которой происходит усиление отраженных волн, распространяющихся в направлениях, задаваемых условием Брэгга-Вульфа. Отраженные во всех других направлениях волны подавляются.

Условия наблюдения дифрагированного пучка нейтронов наглядно можно представить как нейтронно-оптическое явление, состоящее в отражении нейтронных волн от определенного набора кристаллических плоскостей. Такая интерпретация позволяет выполнить анализ геометрических условий дифракции и, в некоторых частных случаях, анализ интенсивностей отраженных пучков. Последовательное изложение теории дифракции на основе решения стационарного, одночастичного у. Ш. (см. гл. 2), позволяющего описать нейтронно-оптические явления, дано, например, в книге [Sears, 1989]. В.К.Игнатович [Игнатович, 2006] предложил матричный подход в нейтронной оптике, который может быть весьма эффективен в некоторых конкретных вычислениях.

Оптическая интерпретация дифракции позволяет вывести формулу Брэгга-Вульфа в виде (В3) во Введении:  $n\lambda = 2d \sin \theta_B$ , полученную в 1913 году одновременно и независимо Ю.В.Вульфом (Россия) и отцом и сыном В.Г. и В.Л.Брэггами (Великобритания). Вывод этой формулы следует из предположения, что интерференция волн, отраженных от соседних кристаллических плоскостей, приводит к конструктивному сложению (усилению амплитуды волн), только если их разность хода составляет целое число длин волн (рис. (3.3.1)).



**Рис. 3.3.1.** Брэгговское отражение волны от двух соседних кристаллических плоскостей, проведенных через узлы кристаллической решетки (черные точки).

Другой подход, который можно назвать стандартным, заключается в решении у. Ш. с псевдопотенциалом Ферми либо на основе теории возмущений (однократное рассеяние, *кинematicкая теория*), либо более строго с учетом возможности многократного рассеяния (*динамическая теория*).

Здесь мы ограничимся кратким изложением основных идей стандартного подхода. Необходимые для этого некоторые базовые понятия кристаллографии – трансляционная инвариантность, элементарная ячейка, кристаллическая (или прямая) решетка, обратная решетка и обратное пространство – имеются в любом курсе физики твердого тела и кристаллографии (см. также § 13.3).

### 3.3.1. Кинematicкая дифракция

Рассмотрим кристаллическую решетку, состоящую из  $N$  элементарных ячеек в объеме  $V$ . Для простоты будем рассматривать простую *ячейку Браве*, имеющую по одному атому массой  $M$  на элементарную ячейку. Общий случай решетки с базисом, когда в элементарной ячейке больше одного атома, рассмотрен в главе 13. Координаты узлов кристаллической решетки определяются равновесными положениями атомов и могут быть записаны в виде

$$\vec{l} = l_1 \vec{a}_1 + l_2 \vec{a}_2 + l_3 \vec{a}_3, \quad (3.3.1)$$

где  $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$  – базисные векторы элементарной ячейки, определяющие трансляционные свойства кристаллической решетки,  $l_1, l_2, l_3$  – целые числа. Обратное пространство определяется базисом трех векторов:

$$\vec{b}_1 = \frac{[\vec{a}_2 \cdot \vec{a}_3]}{v}, \quad \vec{b}_2 = \frac{[\vec{a}_3 \cdot \vec{a}_1]}{v}, \quad \vec{b}_3 = \frac{[\vec{a}_1 \cdot \vec{a}_2]}{v}, \quad (3.3.2)$$

где  $v = \vec{a}_1 \cdot [\vec{a}_2 \cdot \vec{a}_3] = \frac{V}{N}$  – объем элементарной ячейки в прямом пространстве.

Кинematicкая теория упругого когерентного рассеяния, согласно основным формулам (2.4.17), определяется уравнением:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = b_k^2 \left| \sum_i \langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_i) \rangle \right|^2 \equiv b_k^2 |I(\vec{q})|^2, \quad (3.3.3)$$

которое является основой при определении кристаллических структур в нейтронографии. В (3.3.3) введена интерференционная функция  $I(\vec{q})$ , которая для бесконечно большого кристалла (в термодинамическом пределе) имеет вид:

$$I(\vec{q}) = \frac{(2\pi)^3}{V} \sum_n \Delta(\vec{q} - \vec{g}_n), \quad (3.3.4)$$

где было использовано свойство сумм:

$$\frac{1}{N} \sum_i \exp(i(\vec{k} - \vec{q})\vec{l}) = \Delta(\vec{k} - \vec{q}) = \begin{cases} 1 & k = \vec{q} + \vec{g}_n \\ 0 & k \neq \vec{q} + \vec{g}_n \end{cases}, \quad (3.3.5)$$

$\vec{g}_n$  – вектор обратной решетки:



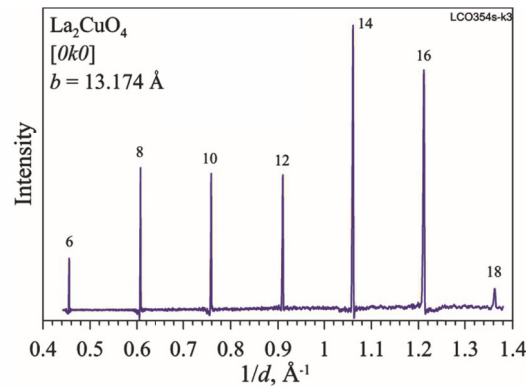
$$\vec{g}_n = 2\pi(n_1\vec{b}_1 + n_2\vec{b}_2 + n_3\vec{b}_3), \quad (3.3.6)$$

где  $n_1, n_2, n_3$  – целые числа.

Итак, дифференциальное сечение рассеяния идеального кристалла состоит из набора пиков в обратном пространстве. Эти пики называются *пики Брэгга* (брэгговскими пиками), а их положения определяются *уравнением Лауэ*:

$$\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0 = \vec{g}_n. \quad (3.3.7)$$

Кинематическая теория дифракции показывает, что рассеяние на кристалле сопровождается передачей вектору рассеяния нейтронов вектора обратной решетки. По этой теории сечение рассеяния содержит бесконечно узкие пики с высотой, пропорциональной квадрату числа атомов в кристалле. Положения пиков определяют симметрию кристалла (тип решетки), интенсивность – положения атомов в решетке, ширина пиков – величину смещений атомов из симметричных положений. Кинематическая теория позволяет связать дифракционные пики со структурой кристалла, но не может описать ширины пиков и становится неприменимой для больших объемов  $V_0$ .



**Рис. 3.3.2.** Порядки отражения (с 6-го по 18-й), измеренные при отражении нейтронного пучка от плоскости (010) монокристалла La<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> (направление [0k0] в обратной решетке).

В качестве примера, на рис. 3.3.2 показана нейтронограмма, измеренная при отражении от плоскости (010) монокристалла La<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub> (направление [0k0] в обратной решетке), измеренная на реакторе ИБР-2 (ОИЯИ), на дифрактометре по времени пролета ФДВР (§ 13.4). Рабочий диапазон длин волн на ФДВР позволил наблюдать порядки отражения от кристаллографических плоскостей от 6-го до 18-го.

Реально интенсивность дифракционных пиков определяется их *структурными факторами* и связана, соответственно, с положениями атомов в элементарной ячейке, а их ширина зависит, в основном, от функции разрешения дифрактометра. Структурный фактор помимо когерентной длины рассеяния  $b_k$ , в

нашем упрощенном рассмотрении, содержит еще решеточную сумму по всем атомам в элементарной ячейке ( $\nu=1 \dots n$ ) в случае решетки с базисом (см. § 13.3, формула (13.3.15)) и фактор Дебая-Валлера:  $\exp(-W_{\nu n})$ , который учитывает колебания атомов (см. § 5.1, формула (5.1.23)):

$$F_n \equiv F(\vec{g}_n) = \sum_{\nu=1}^n b_{\nu} \exp(-W_{\nu n}) \exp(i\vec{g}_n \vec{r}_{\nu}). \quad (3.3.8)$$

Дифференциальное сечение рассеяния (3.3.3) принимает вид:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = N \frac{(2\pi)^3}{V} \sum_n |F_n|^2 \Delta(\vec{q} - \vec{g}_n). \quad (3.3.9)$$

Практическое использование приведенных выше формул, являющихся основой структурной нейтронографии, описано в главе 13. Мы же вернемся к обсуждению общего вида сечения рассеяния (3.3.9). Заметим [Sears, 1989] (см. также [Иверонова и Ревкевич, 1978]), что точка  $n=0$  ( $n_1 n_2 n_3 = 000$ ) в (3.3.6) является выделенной:

$$\vec{g}_0 = 0, \quad F_0 = \sum_{\nu=1}^n b_{\nu} = nb_k, \quad (3.3.10)$$

где  $b$  – усредненная по ячейке длина рассеяния. С учетом этого обстоятельства сечение рассеяния представим в виде:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{(2\pi)^3}{V} N \left[ nb_k \delta(\vec{q}) + \sum_{n \neq 0} |F_n|^2 \delta(\vec{q} - \vec{g}_n) \right]. \quad (3.3.11)$$

Первое слагаемое в этом выражении описывает дифрагированный (рассеянный) вперед пучок – это то, что называется *малоугловым расеянием (малоугловой дифракцией)*. Второе слагаемое представляет собой брэгговское рассеяние. Важно отметить, что малоугловое рассеяние присутствует всегда – и в аморфном веществе и в кристаллах. Эффект кристаллической структуры состоит в том, что фраунгоферовская дифракционная картина воспроизводится не только при рассеянии вперед, как в аморфном веществе, но и в каждом узле обратной решетки с интенсивностью, характеризуемой структурным фактором. В нулевом узле обратной решетки интерференционный максимум наблюдается всегда, независимо от внутренней структуры рассеивателя, так как разность хода для волн, рассеянных атомами, расположенными как угодно внутри рассеивающей области при  $q \rightarrow 0$  равна нулю. Это означает, что нулевой интерференционный максимум наблюдается и для некристаллических сред. Исследованию нулевого узла посвящен следующий параграф.

### 3.3.2. Метод Эвальда

Уравнение (3.3.11) называется уравнением Лауэ, так как оно эквивалентно интерференционному уравнению, полученному М.Лауэ в 1912 г. в первой работе по дифракции рентгеновских лучей кристаллами. Его интерпретация в терминах обратной решетки была дана П.П.Эвальдом в 1921 г., который показал, что

уравнение (3.3.7) имеет простую интерпретацию на сфере распространения, в обратном пространстве, которая получила название *сферы Эвальда* (сфера отражения).

Проекция сферы Эвальда показана на рис. 3.3.3. Точки изображают узлы решетки в обратном пространстве. В центр сферы  $O$  помещается волновой вектор  $\vec{k}_0$  падающего пучка частиц, его конец упирается в ближайший узел обратной решетки, так что радиус сферы равен  $|\vec{k}_0|$ . При упругом рассеянии  $|k_1| = |k_0|$ , поэтому конец вектора  $\vec{k}_1$  рассеянного пучка попадет в какую-то точку сферы. В этом представлении согласно уравнению Лауэ брэгговское рассеяние будет иметь наибольшую интенсивность всякий раз, когда один или больше дополнительных узлов обратного пространства попадет на сферу. Поскольку вектор обратного пространства  $\vec{g}$  фиксирован, то из построения сферы Эвальда (рис. 3.3.3) следует ограничение на угол рассеяния  $\theta$ :

$$g = 2k \sin \theta/2, \quad (\theta = 2\theta_B), \quad (3.3.12)$$

Таким образом, дифракция возникает при таких ориентациях кристалла относительно падающего пучка, при которых точка обратного пространства попадает на сферу.

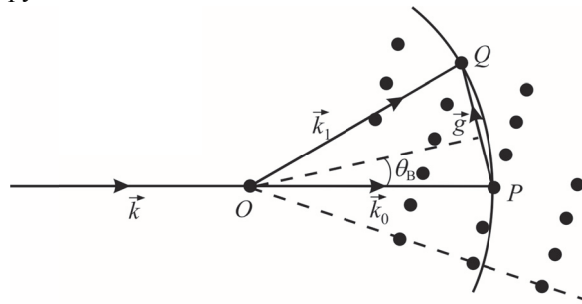


Рис. 3.3.3. Построение сферы Эвальда.

То же самое можно сформулировать иначе. Из свойств обратных решеток следует, что длина вектора обратной решетки  $\vec{g}$  обратно пропорциональна расстоянию  $d$  между плоскостями, к которым этот вектор перпендикулярен:

$$g = \frac{2\pi n}{d}, \quad (3.3.13)$$

где  $n$  – целое число, общий наибольший делитель компонент вектора  $\vec{g}$  относительно тройки осей в обратном пространстве.

Из формул (3.3.12) и (3.3.13) получаем закон Брэгга-Вульфа в виде (ВЗ). Чтобы дифрагированные пучки были когерентны, на избыточном пути  $ABC$  (рис. 3.3.3) должно укладываться целое число длин волн.

Метод Эвальда дает наглядную интерпретацию двух возможностей дифракционного эксперимента – в *геометрии Лауэ* (на прохождение) и в *геометрии Брэгга* (на отражение). В первом случае на кристалл падает коллимированный белый (полиэнергетический) пучок нейтронов. Волновые вектора  $\vec{k}_0$  направлены в основном в одном направлении, но различаются по величине. Для значений  $k_0$ , соответствующих сфере Эвальда, пересекающей узлы обратной решетки, будет наблюдаться моноэнергетический пучок, отраженный согласно закону Брэгга-Вульфа.

Во втором случае используется моноэнергетический пучок, и кристалл вращается относительно перпендикулярной пучку оси. В результате происходит вращение сферы Эвальда относительно обратной решетки и брэгговское рассеяние возникает всякий раз, когда сфера пересекает узел обратной решетки.

### 3.3.3. Динамическая теория дифракции

В кинематической теории дифракции, построенной на основе первого борновского приближения, учитываются только однократные столкновения нейтрона в мишени. Это приближение перестает работать при появлении эффектов многократного отражения, например, в больших идеальных кристаллах. В этом случае первично отраженные от кристаллических плоскостей волны будут испытывать вторичное отражение и распространяться вдоль направления падающей волны. Деструктивная интерференция падающей и вторично отраженных волн приводит к заметному уменьшению амплитуды падающей волны (первичная экстинкция). Динамическая теория дифракции в идеальных кристаллах учитывает интерференцию всех возникающих при рассеянии волн.

Представим кристалл в виде бесконечного, перпендикулярного оси  $z$ , кристаллического слоя толщины  $D$ . Взаимодействие нейтрона с этим слоем описывается трехмерным периодическим потенциалом:

$$u(\vec{r}) = \sum_{\vec{g}} v(\vec{g}) \exp(i\vec{g}\vec{r}), \quad (3.3.14)$$

где  $\vec{g}$  – вектор обратной решетки, а коэффициенты разложения  $v(\vec{g})$  и  $v(-\vec{g})$  в силу вещественности потенциала (мы не учитываем сейчас потерь, обуславливающих мнимую добавку к потенциалу) комплексно сопряжены друг с другом:  $v(-\vec{g}) = v^*(\vec{g})$ . Компонента  $v(0)$  представляет собой усредненный потенциал, совпадающий с оптическим потенциалом среды  $u_0$ . Однако волновая функция внутри периодического потенциала не совсем периодична. Это означает, что волновая функция  $\psi(\vec{r})$  внутри кристалла представима в виде

$$\psi(\vec{r}) = \exp(i\vec{k}\vec{r}) \varphi(\vec{r}), \quad (3.3.15)$$

где  $\vec{k}$  – волновой вектор Блоха, а  $\varphi(\vec{r})$  – периодическая функция, которая, как и потенциал (3.3.1), записывается в виде ряда Фурье:

$$\varphi(\vec{r}) = \sum_{\vec{g}} \Phi(\vec{g}) \exp(i\vec{g}\vec{r}). \quad (3.3.16)$$

Из сопоставления (3.3.15) и (3.3.16) видно, что компоненты  $\vec{k}_{\parallel}$ , параллельные поверхности кристалла, можно принять равными  $\vec{k}_{0\parallel}$ , поскольку  $\vec{k}_{\parallel}$  в силу непрерывности волны на границе и дискретности кристаллических плоскостей может отличаться от  $\vec{k}_{0\parallel}$  только на вектор обратной решетки  $\vec{g}_{\parallel}$  кристаллических плоскостей, но  $\vec{g}_{\parallel}$  можно перенести в сумму (3.3.16).

Для того, чтобы найти коэффициенты  $\Phi(\vec{g})$ , подставим волновую функцию в уравнение Шредингера и с учетом разложения (3.3.16) получим

$$\exp(i\vec{k}\vec{r}) \sum_{\vec{g}} \left( \left[ (\vec{k} + \vec{g})^2 - k_0^2 \right] \Phi(\vec{g}) + \sum_{\vec{g}'} V(\vec{g}') \Phi(\vec{g} - \vec{g}') \right) \exp(i\vec{g}\vec{r}) = 0. \quad (3.3.17)$$

Это уравнение эквивалентно бесконечной системе уравнений для  $\Phi(\vec{g})$

$$\left[ (\vec{k} + \vec{g})^2 - k_0^2 \right] \Phi(\vec{g}) + \sum_{\vec{g}'} V(\vec{g}') \Phi(\vec{g} - \vec{g}') = 0. \quad (3.3.18)$$

Система однородна, и потому имеет ненулевое решение только тогда, когда детерминант ее коэффициентов обращается в нуль. Приравняв нулю бесконечномерный детерминант, получаем уравнение бесконечной степени для блоховских векторов  $\vec{k}$ , а поскольку  $\vec{k}_{\parallel} = \vec{k}_{0\parallel}$ , то уравнение определяет только нормальную компоненту  $k_{\perp}$ .

Уравнение имеет бесконечное множество решений  $k_{n\perp}$ , и, после того как мы их найдем, можно все коэффициенты однородной системы  $\Phi(\vec{g})$  выразить через один из них, например  $\Phi(0)$ , а потом воспользоваться граничными условиями непрерывности функции и ее производной, чтобы найти все волны в пустом пространстве, порожденные дифракцией в кристалле. Разумеется, целиком эта программа не выполнима и она может быть реализована только в том или ином приближении [Sears, 1989; Игнатович, 2006].

Динамическая теория предсказывает эффекты, которых нет в кинематической теории. Это очень узкие пики при отражении от совершенных монокристаллов, так называемый *маятниковый эффект* и эффект подавления неупругих каналов взаимодействия нейтронов с ядрами при прохождении ими сквозь кристалл. К тому же динамическая теория позволяет дать единое толкование как явлениям, связанным с интерференцией в среде волн, которые распространяются в направлении первичной волны (преломление, полное отражение), так и явлениям дифракции.

Оба варианта дифракции нейтронов, и кинематическая, и динамическая, используются для анализа экспериментов, проводимых в рамках структурной нейтронографии. Для выполнения собственно структурного анализа, т.е.

определения положений атомов или ориентаций магнитных моментов в кристалле, как правило, достаточно кинематической теории, поскольку редко удается получить кристаллы, достаточно совершенные для проявления динамических эффектов. Для анализа переходных процессов в кристаллах, в частности, структурных фазовых переходов также используется кинематическая теория. То же самое можно сказать о различных прикладных исследованиях, выполняемых с помощью дифракции нейтронов, например, для диагностики остаточных напряжений в объемных промышленных изделиях или конструкционных материалах. Динамическая теория дифракции незаменима при описании действия нейтронных интерферометров, изготавливаемых из единого блока совершенных монокристаллов.

### § 3.4. Малоугловое рассеяние нейтронов

В предыдущих параграфах были рассмотрены упорядоченные периодические системы. Перейдем к неупорядоченным трехмерным средам. Напомним, что мы основываемся на методе псевдопотенциала Ферми (гл. 2). Возможности извлечения структурной информации из результатов дифракционного эксперимента существенно зависят от степени упорядоченности изучаемого объекта – чем ниже степень упорядоченности, тем менее информативной будет дифракционная картина. Пространственное разрешение, которое можно получить при исследовании объектов с низкой степенью упорядоченности хуже, чем размеры атомов и межатомные расстояния. Поэтому при изучении разупорядоченных систем можно ограничиться центральной частью дифракционной картины, то есть областью малых векторов рассеяния.

При упругом когерентном рассеянии волны распространяются вдоль конусов, имеющих ось, направленную вдоль волнового вектора, рассеянной волны. Углы между осью и образующими конуса определяются уравнением:

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \frac{\theta}{2}, \quad (3.4.1)$$

которое получается подстановкой уравнения Лауэ (3.3.11) в уравнение (3.3.12). В (3.4.1)  $q$  – переданное волновое число,  $\lambda$  – длина волны падающего нейтрона,  $\theta$  – угол рассеяния. В приближении малых углов получаем

$$q = \frac{2\pi}{\lambda} \theta. \quad (3.4.2)$$

Формально выражение (3.4.1) есть переписанное уравнение Брэгга-Вульфа (3.3.14), поэтому иногда ошибочно используют изолированный пик в интенсивности рассеяния для измерения расстояния между частицами. Приблизительно так можно делать в случае сферических частиц, но в общем случае это не верно. Условие Брэгга-Вульфа применимо только для периодических структур.

В методе малоугловой дифракции анализируется уширение пучка нейтронов в диапазоне углов рассеяния от 0.2 до  $5 \cdot 10^{-6}$  рад с длиной волны от 0.1 до 2 (и более) нм, что соответствует векторам рассеяния от 5 до  $10^{-2} \text{ нм}^{-1}$ . При малоугловом рассеянии, как и при брэгговской дифракции, имеется отраженная и преломленная волны. Однако дифракционное рассеяние на малые углы (отраженная волна) происходит на рассеивателях (неоднородностях среды), размеры которых обычно на много превышают длину волны нейтронов, и определяется размерами этих неоднородностей. В этом состоит отличие от брэгговской дифракции, которая обусловлена интерференцией волн, когерентно рассеянными отдельными атомами, расстояния между которыми порядка длины волны нейтронов и определяется кристаллической структурой.

Итак, *метод малоуглового рассеяния нейтронов* (МУРН) служит для изучения так называемых надатомных структур, то есть систем, размер элементов структуры которых существенно превышает межатомные расстояния, а также разного рода дисперсных систем. Особенно этот метод актуален в молекулярной биологии, где кристаллические структуры большая редкость. Одним из наиболее востребованных применений МУРН является определение формы и размера элементов (частиц) образца: коллоидных частиц, макромолекул в растворах, пор в твердых телах и т.п. Далее обсудим основные черты метода [Свергун и Фейгин, 1986; Сердюк и др., 2010, т.2, гл. 2; Авдеев и Аксенов, 2010].

#### 3.4.1. Общие замечания

Исследование взаимодействия излучений со случайными средами с неизбежностью содержит элементы феноменологии, что связано с необходимостью использования корреляционных функций. Их конкретный вид определяется из заданных условий, но при этом присутствует элемент произвольности. В этом смысле они являются феноменологическими параметрами, смысл которых достаточно понятен, но сами они могут быть определены только из эксперимента. В случае МУРН роль такого параметра играет корреляционная функция  $\langle \rho(\vec{r}) \rho(0) \rangle$ , где  $\rho(\vec{r})$  – плотность длины рассеяния (ПДР) в точке  $\vec{r}$ . Частая ошибка при интерпретации экспериментальных данных состоит в том, что интенсивность рассеяния  $I(\vec{q})$  считают фурье-образом коррелятора от плотности образца, тогда как она является фурье-образом корреляционной функции от ПДР. Например, расстояние между молекулами воды (0.28 нм) не определяется в эксперименте МУРН, а сфера с таким же радиусом (толщиной) оболочки, но диаметром 5 нм прекрасно обнаруживается. В типичном эксперименте МУРН детектируются пространственные корреляции в интервале от 1 до 100 нм.

Главным достоинством метода является его общность, основные формулы, связывающие интенсивность рассеяния со структурой объекта, определяются только рассеивающей способностью неоднородностей, их контрастом по

отношению к основной матрице. В экспериментах МУРН обычно рассматривают матрицу (раствор) как однородную изотропную среду, которую можно характеризовать постоянной ПДР, и вводят разность между ПДР частиц и ПДР матрицы. Эта разница называется *контрастом*. Контраст – одно из основных понятий в методе МУРН, его используют для выделения интересующего объекта на фоне раствора. Для этого вычитают интенсивность рассеяния в растворителе из интенсивности рассеяния в растворе. Хотя в общем случае есть определенный произвол в определении контраста, но для ряда случаев этот подход оказывается весьма успешным. Так, в химической физике, органической химии и в биохимии активно используется изотопное замещение водорода на дейтерий. В первом приближении структура неоднородностей в образце не меняются, но различие когерентных длин рассеяния изотопов ( $b_D = 0.667 \cdot 10^{-12}$  см,  $b_H = -0.374 \cdot 10^{-12}$  см) позволяет организовать несколько вариантов контрастирования, замещая водород на дейтерий последовательно в растворе и растворителе.

Когда исследуемую систему нельзя представить в виде раствора или ансамбля частиц, вкрапленных в матрицу, рассеяние определяется флуктуациями плотности относительно среднего значения. Например, для равновесной однофазной системы источником рассеяния являются термодинамические флуктуации:

$$I(q) \cong I(0) = N \langle b_k \rangle^2 k_B T \chi_T + I_{\text{нк}}, \quad (3.4.3)$$

где  $N$  – число молекул,  $\langle b_k \rangle$  – средняя когерентная длина рассеяния каждой молекулы,  $\chi_T$  – изотермическая восприимчивость,  $I_{\text{нк}}$  – интенсивность некогерентного рассеяния. В бинарных системах изотропное рассеяние на флуктуациях состоит из двух слагаемых, обусловленных флуктуациями плотности и флуктуациями концентраций.

### 3.4.2. Интенсивность рассеяния

Задача эксперимента МУРН – определить по измеряемому дифференциальному сечению распределение плотностей длин рассеяния  $\rho(\vec{r})$  внутри неоднородностей и описать возможные корреляции между неоднородностями для различных величин (расположение, ориентация, намагниченность и т.п.).

Дифференциальное сечение рассеяния и распределение ПДР связаны между собой через амплитуду рассеяния (фурье-образ распределения ПДР):

$$f(\vec{q}) = \int \rho(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r}. \quad (3.4.4)$$

Здесь интеграл берется по всему (когерентному) объему исследуемой системы (для нейтронов – более 1 мкм<sup>3</sup>). Для дифференциального сечения рассеяния имеем



$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{q}) = |f(\vec{q})|^2 = \int_{V_0} \int_{V_0} \rho(\vec{r}_1) \rho(\vec{r}_2) \exp(i\vec{q}(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2. \quad (3.4.5)$$

Двойное интегрирование в (3.4.5) принято выполнять в два этапа. Сначала суммируют все пары с одинаковыми относительными расстояниями  $|\vec{r}| = |\vec{r}_1 - \vec{r}_2| = \text{const}$  при  $\exp(i\vec{q}\vec{r}) = \text{const}$ . При этом выделяется автокорреляционная функция

$$\Pi(\vec{r}) = \int \rho(\vec{r}_1) \rho(\vec{r}_2) d\vec{r}_1 = \int \rho(\vec{r}_1) \rho(\vec{r}_1 - \vec{r}) d\vec{r}_1 \quad | \vec{r}| = |\vec{r}_1 - \vec{r}_2| = \text{const}. \quad (3.4.6)$$

В теории дифракции такая функция известна как *функция Паттерсона*. Она центросимметрична, так как каждая пара точек учитывается дважды для расстояний  $\vec{r}$  и  $-\vec{r}$ . Вторым этапом суммируют по относительным расстояниям (включая и фазовый множитель):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{q}) = I(\vec{q}) = \int \Pi(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r}. \quad (3.4.7)$$

Эта формула связывает сечение рассеяния (экспериментально измеряемую величину) и автокорреляционную функцию, которая, хотя и косвенно, связана со структурой образца. Как видим автокорреляционную функцию можно получить обратным фурье-преобразованием из (3.4.7).

Далее мы будем рассматривать простой, но вполне реалистичный случай рассеяния на ансамбле тождественных (монодисперсных), однородных и не взаимодействующих частиц, расположенных случайным образом с малой концентрацией в однородной среде. Хотя частицы тождественны, они все еще отличаются друг от друга своими рассеивающими свойствами, поскольку принимают различные ориентации. Поэтому в выражении (3.4.7) надо выполнить усреднение по ориентациям, которое проводится по телесному углу  $\Omega$  в сферических координатах  $r, \theta, \varphi$  (рис. 2.1.2). Ориентация структуры при усреднении по  $\Omega$  считается фиксированной, поэтому отделяется зависящая от угла  $\Omega$  часть:

$$\langle I(\vec{q}) \rangle = \int \langle \Pi(\vec{r}) \rangle \int_{\Omega=0}^{4\pi} \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\Omega d\vec{r}. \quad (3.4.8)$$

Усредненная по ориентациям функция Паттерсона называется корреляционной функцией, явный вид ее в силу принятых приближений нам не понадобится. Рассмотрим усреднение фазового множителя

$$\langle \exp(i\vec{q}\vec{r}) \rangle = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^\pi \exp(iq\vec{r}) \sin\theta d\theta = \frac{\sin qr}{qr}. \quad (3.4.9)$$

Это классическая *формула Дебая* [Debye, 1915].

В случае тождественных, однородных частиц малой концентрации форма кривой малоуглового рассеяния от такого образца совпадает с кривой рассеяния от одной частицы. Корреляционная функция принимает простой вид:

$$\langle \Pi \rangle = K^2 = \langle \rho(\vec{r}) - \rho_0 \rangle^2 = \left[ \frac{1}{V_0} \int (\rho(\vec{r}) - \rho_0) d\vec{r} \right]^2 = (\bar{\rho} - \rho_0). \quad (3.4.10)$$

где  $K$  – параметр контраста,  $V_0$  – объем частицы,  $\rho_0$  – ПДР раствора. Окончательно дифференциальное сечение рассеяния на единицу объема образца (интенсивность рассеяния) принимает вид:

$$\frac{d\Sigma(q)}{d\Omega} = I(q) = nK^2 \int \frac{\sin(qr)}{qr} dr \equiv nP(q). \quad (3.4.11)$$

где  $n$  – объемная концентрация частиц.

Отметим, что в формуле (3.4.11) вследствие ориентационного усреднения переменные  $r$  и  $q$  являются скалярами и *формфактор частицы* (дифференциальное рассеяние на одной частице)  $P(q)$  определяется формулами:

$$P(q) = f^2(q), \quad (3.4.12)$$

$$f(q) = 4\pi \int_0^{R_{\max}} (\rho(r) - \rho_0) \frac{\sin(qr)}{qr} r^2 dr, \quad (3.4.13)$$

где  $R_{\max}$  – максимальный радиус частицы.

Существенным в (3.4.10) является переход к интегрированию по объему одной частицы с одновременной заменой ПДР в объеме образца разностями  $\bar{\rho} - \rho_0$ , которые определяют рассеивающую способность частиц и их отдельных компонентов на фоне растворителя (контраст).

Важной особенностью выражения для формфактора является то, что расстояние, которое может быть надежно (при достаточно большом отношении сигнал/фон) зарегистрировано, сосредоточено в области малых значений  $q$ , отвечающих условию:

$$q \sim \frac{2\pi}{D}, \quad (3.4.14)$$

где  $D$  – характерный размер частицы.

### 3.4.3. Законы Гинье и Порода

Кривую рассеяния (3.4.11) можно анализировать, используя инварианты (интегральные параметры) рассеяния. Так, независимо от распределения ПДР, при достаточно малых  $q$  имеет место *закон Гинье*:

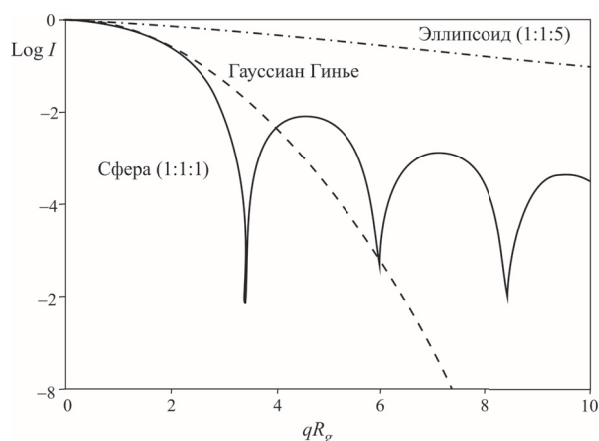
$$I(q) \underset{q \rightarrow 0}{=} I(0) \exp\left(-\frac{1}{3} R_g^2 q^2\right), \quad (3.4.15)$$

где  $I(0)$  – интенсивность рассеяния вперед;  $R_g$  – радиус инерции распределения ПДР внутри частицы:

$$R_g^2 = \frac{\int_{V_0} (\rho(r) - \rho_0) r^2 dr}{\int_{V_0} (\rho(r) - \rho_0) dr}. \quad (3.4.16)$$

Закон Гинье выполняется при условии  $qR_g < 1$  для частиц любой формы. На рис. 3.4.1 показаны кривые малоуглового рассеяния для сферы и вытянутого эллипсоида с отношением осей 1:1:5. Чтобы проследить влияние формы частицы независимо от ее абсолютного размера, кривые построены в виде функций произведения  $qR_g$ . По оси ординат отложен Log функции (3.4.15).

Аппроксимация Гинье (длина Гинье-участка) действительна для больших или меньших значений  $qR_g$  в зависимости от формы частицы. Так, для эллипсоидов с отношением осей примерно 1:1:1.7 (вытянутый) или 1:1:1.6 (сплюснутый) аппроксимация является хорошей при значениях  $qR_g$ , выходящих далеко за пределы 1. Напротив, для более компактных форм (например, сферы – самой компактной формы) кривая рассеяния отклоняется *ниже* аппроксимации Гинье, в то время как для более асимметричных форм (таких как удлинённые или сплюснутые эллипсоиды с отношением осей 1:1:>1.7 или 1:1:<0.6, соответственно: например, 1:1:5, изображенный на рисунке) кривая рассеяния отклоняется *выше* аппроксимации Гинье.



**Рис. 3.4.1.** Кривые малоуглового рассеяния сферы и эллипсоида вращения в зависимости от  $qR_g$ ; также показана кривая Гинье гауссовой функции.  $R_g$  – это радиус инерции в каждом случае. Следует обратить внимание, что все кривые совпадают с аппроксимацией Гинье при малых значениях  $qR_g$  [Сердюк и др., 2010, т. 2. гл. E2].

Кривая на рис. 3.4.1 имеет осциллирующий характер. Амплитуда этих осцилляций уменьшается с ростом  $R_g$  при увеличении аргумента. Осцилляции характерны для сферических частиц в сильно разбавленных монодисперсиях. В реальных системах зависимость кривой рассеяния имеет вид огибающей по максимумам осцилляторной функции.

Для полностью однородных частиц с плотностью  $\rho$  имеем:

$$I(0) = m v_0^2 (\rho - \rho_0)^2 = \phi v_0 (\rho - \rho_0)^2 = \phi v_0 K, \quad (3.4.17)$$

где  $\phi$  – объемная доля частиц в растворе. Видно, что абсолютное значение ПДР частицы не играет существенной роли, так как главный фактор – разность между

ПДР частицы и растворителя, причем из-за квадратичной зависимости от контраста в эксперименте МУРН невозможно сказать, какая плотность больше. Если частица обладает нулевой ПДР (т.е. не рассеивает нейтроны), но находится в среде с ненулевой ПДР, то это эквивалентно ситуации, когда мы имеем аналогичные частицы с ненулевой плотностью в вакууме. Радиус инерции однородной частицы напрямую связан с ее формой. Предполагая какую-либо форму, из экспериментального значения  $R_g$  оценивают ее параметры.

Для однородных частиц информативен *интеграл (инвариант) Порода*:

$$Q = \int_0^\infty I(q) q^2 dq = 2\pi^2 n v_0 (\rho - \rho_0)^2. \quad (3.4.18)$$

Определяя одновременно (3.4.17) и (3.4.18), находим объем частицы из отношения:

$$v_0 = 2\pi^2 I(0)/Q. \quad (3.4.19)$$

В общем случае отношение (3.4.19) носит название объем Порода.

Закон Гинье в форме (3.4.15) хорошо описывает частицы сферической и близкой к ней формам, например, эллипсоид. Если один из размеров частицы много больше другого (например, цилиндр, длина которого  $2H$  в пять раз больше его радиуса  $R$ ) закон Гинье принимает вид:

$$I(q) \sim \frac{\pi}{2Hq} \exp(-q^2 R_{g2}^2/2), \quad (3.4.20)$$

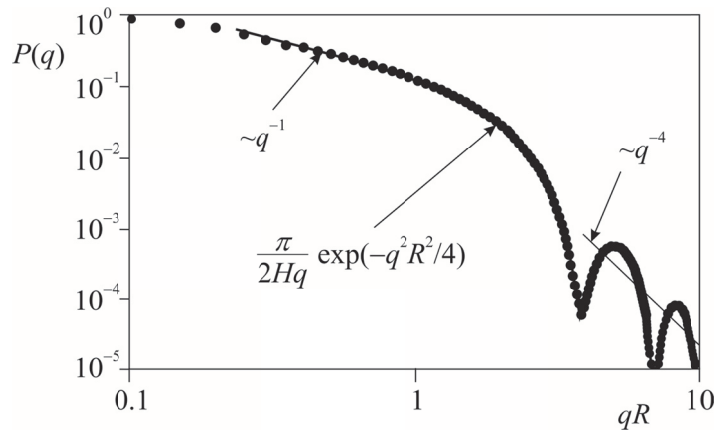
где  $R_{g2}$  – «двумерный» радиус инерции сечения  $A$  цилиндра  $R_{g2} = R/2$ .

Если частица плоская, например, диск толщиной  $D$ , то закон Гинье принимает вид

$$I(q) \sim \frac{\pi^2}{Aq^2} \exp(-q^2 R_{g1}), \quad (3.4.21)$$

где  $A$  – площадь плоской поверхности и  $R_{g1}$  – «одномерный» радиус инерции:  $R_{g1} = D/\sqrt{3}$ .

Используя эти три представления закона Гинье (3.4.15), (3.4.20) и (3.4.21), в принципе, можно различить форму частиц по поведению функции рассеяния малых  $q$ . Характерным признаком является  $q$ -зависимость лоренцевского множителя  $q^{-\alpha}$  перед экспонентами: для равноосных частиц  $P(q) \sim q^0$ , для длинного цилиндра  $P(q) \sim q^{-1}$  и для тонкого диска  $P(q) \sim q^{-2}$ . Еще раз подчеркнем, что эта интерпретация поведения при малых  $q$  справедлива лишь при отсутствии интерференции между частицами, что равносильно приближению малой концентрации. Для примера на рис. 3.4.2. показано поведение формфактора для длинных цилиндров.



**Рис. 3.4.2.** Формфактор цилиндров радиусом  $R$  и длиной  $2H$  (точки на кривой),  $H/R = 10$ . Осцилляции при больших  $q$  уменьшаются при фиксированном  $R$ . Показан участок закона Гинье (3.4.20) [Fratzl, 1999].

Возможные значения показателя  $\alpha$  собраны в табл. 3.4.1.

**Таблица 3.4.1. Интерпретация показателя степенной зависимости рассеяния**

$\alpha$	
$\alpha = 1$	Вытянутая частица
$\alpha = 2$	Сплюснутая частица
$1 < \alpha < 3$	Массовый фрактал, размерность $D = \alpha$
$3 < \alpha < 4$	Фрактальная поверхность, размерность $D_s = 6 - \alpha$
$\alpha = 4$	Гладкая поверхность, $D_s = 4$ (закон Порода)
$4 < \alpha < 6$	Диффузная поверхность, $\alpha = 4 + 2\beta$

### 3.4.4. Фрактальные и диффузные поверхности

В пределе  $q \rightarrow \infty$ , соответствующем рассеянию на поверхности частиц, интенсивность также подчиняется степенному закону:

$$I(q) \underset{q \rightarrow \infty}{\sim} \frac{B}{q^\alpha}, \quad (3.4.22)$$

где  $B$  – некоторая константа, а показатель степени  $\alpha$  принимает значения от 3 до 6. Диапазон  $3 < \alpha < 4$  соответствует так называемой фрактальной поверхности, которая характеризуется фрактальной размерностью  $D_s$ . В общем случае фрактальная размерность  $D$  вводится через число структурных единиц  $N$ , заключенных в шар радиусом  $r$ :

$$N(r) \sim \left(\frac{r}{R_0}\right)^D, \quad (3.4.23)$$

где  $R_0$  – радиус структурной единицы. Из (3.4.23) для частицы произвольной формы с фрактальной поверхностью ПДР, усредненная по всем ориентациям частицы, как функция радиуса имеет на поверхности вид:

$$\rho(r) \sim r^{D_s-3}. \quad (3.4.24)$$

Соответствующее преобразование Фурье дает связь между фрактальной размерностью поверхности и показателем  $\alpha$ :

$$D_s = 6 - \alpha. \quad (3.4.25)$$

Соотношение (3.4.25) выполняется в диапазоне  $\pi/R_0 < q < 2\pi/d_{in}$ , где  $d_{in}$  – характерная толщина интерфейса (характерный размер поверхностных неоднородностей).

Диапазон  $4 < \alpha < 6$  отвечает так называемой диффузной поверхности. Соответствующая функция ПДР на границе раздела имеет особенность другого вида:

$$\rho(r) = \rho \left( \frac{R_{\max} - r}{a} \right)^\beta, \quad R_{\max} - a < r < R_{\max}, \quad (3.4.26)$$

где  $\rho$  относится к однородному «ядру» частицы,  $a$  определяет некоторую эффективную толщину интерфейса, а показатель степени принимает значения в интервале  $0 \leq \beta < 1$ . В точке  $r = R_{\max}$  ПДР вида (3.4.26) имеет бесконечную производную. Соответствующая связь с показателем  $\alpha$  в (3.4.22) выражается как

$$\alpha = 4 + 2\beta. \quad (3.4.27)$$

Следует отметить, что в случае частиц с симметричной формой, близкой к сферической, выражение (3.4.22) следует рассматривать как асимптотическое поведение кривой рассеяния. В случае более разветвленных (несимметричных) или полидисперсных частиц на кривых рассеяния степенная зависимость регистрируется достаточно надежно. Случай  $\alpha = 4$  отвечает гладкой поверхности и известен как *закон Порода*.

### Рекомендуемая литература к главе 3

- Гуревич И.И. и Протасов В.П. (1997), *Нейтронная физика*, М.: Энергоатомиздат.  
 Игнатович В.К. (2006), *Нейтронная оптика*, М.: Физматлит.  
 Свергун Д.И. и Фейгин Л.А. (1986), *Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние*, М.: Наука.  
 Sears V.F. (1989), *Neutron optics*, N.Y., Oxford, Oxford Univ. Press.

## ГЛАВА 4. ФОРМАЛИЗМ КОРРЕЛЯЦИОННЫХ ФУНКЦИЙ

Рассеяние нейтронов дает нам уникальную возможность изучать как структуру, так и динамику конденсированного вещества на микроскопическом, квантово-механическом уровне. Процесс измерения состоит в следующем: мы приготавливаем начальное состояние падающих на мишень нейтронов и наблюдаем различные состояния рассеянных нейтронов после столкновения их с мишенью. Необходимо вычислить вероятность переходов из начального в конечные состояния системы нейтрон – мишень. Поскольку взаимодействие медленных нейтронов с веществом приводит к слабому возмущению мишени (системы многих частиц), то при описании этого взаимодействия можно пользоваться теорией линейной реакции (первым порядком теории возмущений). Дважды дифференциальное сечение рассеяния, вычисленное исходя из золотого правила Ферми, есть вероятность таких переходов, взвешенная с распределением начальных состояний и просуммированная с учетом плотности конечных состояний. Леон Ван Хов [Van Hove, 1954; 1958] показал, что дважды дифференциальные сечения рассеяния (вообще говоря, любых частиц, если применимо борновское приближение) можно выразить через временные корреляционные функции – квантово-статистические средние операторов возмущения системы в результате взаимодействия нейтрона и мишени.

Таким образом, задача описания процесса рассеяния сводится к задаче статистической механики. Можно сказать, что формула Ван Хова (§ 4.1.) служит мостом от феноменологического подхода к микроскопическому. Общность метода Ван Хова позволяет применять его к системам произвольной физической природы – молекулярным газам, жидкостям, кристаллам. Соответствующие теоретические методы хорошо развиты [например, Боголюбов и Тябликов, 1959; Тябликов, 1965; Зубарев, 1971]. Мы в своем изложении опираемся на эти методы и базовые модели теории конденсированного состояния [Аксенов и Тропин, 2020].

### § 4.1. Формула Ван Хова

В § 2.4 мы рассмотрели рассеяние нейтрона с массой  $m_n$  на мишени, состоящей из  $N$  ( $\sim 10^{23}$ ) одинаковых атомов. Взаимодействие нейтрона с мишенью описывается короткодействующим потенциалом  $V(\vec{r})$ . При рассеянии в результате этого взаимодействия мишень переходит из начального  $|i\rangle$  в конечное состояние  $|f\rangle$ . Нейтрон при этом рассеивается из состояния с импульсом  $\vec{p}_0 = \hbar\vec{k}_0$  и энергией  $E_0 = \hbar^2\vec{k}_0^2/2m$  в состояние с импульсом  $\vec{p}_1 = \hbar\vec{k}_1$  и энергией  $E_1 = \hbar^2\vec{k}_1^2/2m$ . Дважды дифференциальное сечение рассеяния нейтрона в элемент

телесного угла  $d\Omega$  и в интервал энергий  $dE_1$  в борновском приближении было получено в виде (2.4.10), где было проведено квантово-механическое усреднение.

В § 2.4 мы полагали, что мишень находится в определенном состоянии  $|i\rangle$ , сечения когерентного и некогерентного рассеяния в этом случае определяются формулами (2.4.17) и (2.4.18) соответственно. В реальности при конечной температуре  $T$  начальное состояние не является определенным, поэтому при вычислении наблюдаемых величин необходимо проводить помимо квантово-механического усреднения также усреднение по состояниям системы с помощью матрицы плотности или статистического оператора. Исходная формула (2.4.10) сохраняет свой вид, но угловые скобки теперь означают усреднение по всем начальным состояниям системы  $|\vec{k}i\rangle = \phi_k |i\rangle$  с каноническим распределением Гиббса:

$$\rho = \frac{1}{Z} \exp(-\beta H), \quad \beta = \frac{1}{k_B T}; \quad (4.1.1)$$

в (4.1.1)  $\beta$  – обратная температура,  $k_B$  – постоянная Больцмана,  $Z$  – статистическая сумма:

$$Z = \text{Sp}\{\exp(-\beta H)\}, \quad (4.1.2)$$

$H$  – гамильтониан системы (мишень плюс нейтрон):

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}, \quad (4.1.3)$$

где  $H_0$  – оператор исходного гамильтониана,  $\hat{V}$  – оператор взаимодействия. При выполнении усреднения необходимо уточнить вид гамильтониана в (4.1.1) и (4.1.2). В борновском приближении усреднение проводится с гамильтонианом  $\hat{H}_0$ .

Рассмотрим дважды дифференциальное сечение рассеяния (2.4.10). Воспользуемся интегральным представлением  $\delta$ -функции

$$\delta(E_1 - E_0 - \hbar\omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \exp\left[\frac{i}{\hbar}(E_1 - E_0)t\right] \quad (4.1.4)$$

и вводя представление Гейзенберга для оператора  $\hat{V}(\vec{r})$ , запишем матричный элемент в виде:

$$\langle 1|\hat{V}(\vec{r})|0\rangle \exp\left[\frac{i}{\hbar}(E_1 - E_0)t\right] = \langle 1|\hat{V}(\vec{r}, t)|0\rangle,$$

где использованы соотношения:  $\hat{H}_0|0\rangle = E_0|0\rangle$ ,  $\hat{H}_0|1\rangle = E_1|1\rangle$ . Подставляя теперь это выражение в (2.4.10) с учетом (4.1.4), получаем формулу Ван Хова:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} = \frac{k_1}{k_0} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \iint d^3\vec{r} d^3\vec{r}' \exp(i\vec{q}(\vec{r} - \vec{r}')) \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2}\right)^2 \langle \hat{V}(\vec{r}')\hat{V}(\vec{r}, t) \rangle, \quad (4.1.5)$$



где было проведено суммирование по всем конечным состояниям,  $\sum_1 |1\rangle\langle 1| = 1$ , а среднее по равновесному состоянию с распределением Гиббса было обозначено угловыми скобками:

$$F_{AB}(t, t') = Sp \left[ \hat{\rho} \hat{A}(t) \hat{B}(t') \right] \equiv \langle \hat{A}(t) \hat{B}(t') \rangle. \quad (4.1.6)$$

Таким образом, дифференциальное сечение рассеяния частиц в веществе определяется фурье-компонентой пространственно-временной корреляционной функции, связывающей операторы взаимодействия частицы с системой в точке  $\mathbf{r}$  в момент времени  $t$  и в точке  $\vec{r}'$  в нулевой момент  $t' = 0$ . Соотношение (4.1.5) служит основой для экспериментальной проверки различных приближенных моделей в теории конденсированного состояния, на основе которых можно вычислить временную корреляционную функцию для операторов взаимодействия.

Теперь, если мы воспользуемся потенциалом взаимодействия  $V(\vec{r})$  в виде псевдопотенциала Ферми (2.4.12), то получим вместо (4.1.5) выражение для дважды дифференциального сечения рассеяния:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} = \frac{k_1}{k_0} \sum_{lm} \frac{b_l b_m}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \times \langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_l) \cdot \exp(i\vec{q}\vec{R}_m(t)) \rangle, \quad (4.1.7)$$

где  $\vec{R}_m(t)$  – оператор координаты атома сорта  $m$  в представлении Гейзенберга:

$$\vec{R}_m(t) = \exp\left(\frac{i}{\hbar} \hat{H}t\right) \vec{R}_m \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \hat{H}t\right). \quad (4.1.8)$$

Выполняя суммирование по  $l$  и  $m$  как в § 2.4, получаем выражения для когерентного (к) и некогерентного (нк) рассеяния для одноатомного вещества:

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} \right)_k = \frac{k_1}{k_0} \frac{b_k^2}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \times \sum_{lm} \langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_l(0)) \cdot \exp(i\vec{q}\vec{R}_m(t)) \rangle, \quad (4.1.9)$$

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} \right)_{нк} = \frac{k_1}{k_0} \frac{b_{нк}^2}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \times \sum_l \langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_l(0)) \cdot \exp(i\vec{q}\vec{R}_l(t)) \rangle. \quad (4.1.10)$$

В формулах (4.1.9) и (4.1.10)  $b_k$  и  $b_{нк}$  – длины когерентного и некогерентного рассеяния, соответственно, определенные формулами (2.4.19).

Формулы (4.1.7) – (4.1.10) аналогично формулам (2.4.13), (2.4.17) и (2.4.18) называют *обобщенными основными формулами рассеяния*. Легко видеть, что (4.1.7) – (4.1.10) можно получить прямо из (2.4.13), (2.4.17) и (2.4.18), используя выражение для дельта-функции (4.1.4) и выполняя в них квантовомеханическое и статистическое усреднения. Однако полезно иметь формулу Ван Хова в общем виде (4.1.5) для потенциала произвольного взаимодействия. Это нам понадобится, когда мы будем рассматривать не только ядерное рассеяние, но также и магнитное.

## § 4.2. Функции рассеяния

Перепишем основные формулы рассеяния (4.1.7)–(4.1.10) в виде:

$$\frac{1}{N} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} = \frac{k_1}{k_0} \left[ b_k^2 S_k(\vec{q}, \omega) + b_{\text{нк}}^2 S_{\text{нк}}(\vec{q}, \omega) \right], \quad (4.2.1)$$

где введены функции  $S_k(\vec{q}, \omega)$  и  $S_{\text{нк}}(\vec{q}, \omega)$ , называемые функциями рассеяния или динамическими структурными факторами когерентного и некогерентного рассеяния, соответственно:

$$S_k(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) Y(\vec{q}, t), \quad (4.2.2)$$

$$S_{\text{нк}}(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) Y_s(\vec{q}, t). \quad (4.2.3)$$

Функции рассеяния определяются только свойствами рассеивающей системы, зависят от импульса и энергии, полученных мишенью в процессе столкновения. Они не зависят от параметров, связанных с нейтронами и с взаимодействием нейтронов с мишенью. Эти последние заключены в длинах рассеяния  $b_k$  и  $b_{\text{нк}}$ . Свойства мишени заключены в корреляционных функциях (см. (4.1.9), (4.1.10)):

$$Y(\vec{q}, t) = \sum_{lm} \left\langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_l(0)) \cdot \exp(i\vec{q}\vec{R}_m(t)) \right\rangle, \quad (4.2.4)$$

$$Y_s(\vec{q}, t) = \sum_l \left\langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_l(0)) \cdot \exp(i\vec{q}\vec{R}_l(t)) \right\rangle, \quad (4.2.5)$$

Парная корреляционная функция (4.2.4) описывает корреляции между частицами, расположенными в различных точках пространства и в разные моменты времени. Функция (4.2.5) – *автокорреляционная функция* (self-correlation), описывает корреляции в заданной точке пространства, но в разные моменты времени.

Функции рассеяния еще называют функциями отклика, поскольку они отражают спонтанные флуктуации в мишени. Непосредственная связь между функцией отклика и спонтанными флуктуациями обусловлена тем, что медленные нейтроны при столкновении слабо возбуждают мишень и поэтому при описании процесса можно ограничиться теорией линейной реакции (первым порядком теории возмущений), основные черты которой мы рассмотрим дальше в § 4.5.

Введем Фурье – представление корреляционной функции (4.2.4):

$$G(\vec{r}, t) = \int d\vec{q} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) \frac{1}{N} \sum_{lm} \left\langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_l(0)) \cdot \exp(i\vec{q}\vec{R}_m(t)) \right\rangle. \quad (4.2.6)$$

Дальнейшее преобразование не является тривиальным, как может показаться на первый взгляд. Дело в том, что операторы  $\vec{R}_l(0)$  и  $\vec{R}_m(t)$  коммутируют только, когда  $t=0$ , иначе нет. Соответственно, это относится и к экспонентам. Поэтому их произведение не сводится к оператору  $\exp[-i\vec{q} \cdot (\vec{R}_l(0) - \vec{R}_m(t))]$ . С другой

стороны,  $\exp(-i\vec{q}\vec{r})$  есть  $c$ -число, поэтому преобразование Фурье можно перенести под квантово-механическое усреднение и производить его над операторами. Далее надо воспользоваться теоремой о свертках для фурье-преобразований: если

$$F_1(\vec{x}) = (2\pi)^{-3/2} \int_{-\infty}^{\infty} d\vec{y} f_1(\vec{y}) \exp(i\vec{x}\vec{y}),$$

$$F_2(\vec{x}) = (2\pi)^{-3/2} \int_{-\infty}^{\infty} d\vec{z} f_2(\vec{z}) \exp(i\vec{x}\vec{z}),$$

то

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\vec{x} F_1(\vec{x}) F_2(\vec{x}) \exp(-i\vec{x}\vec{r}) = \int d\vec{r}' f_1(\vec{r} - \vec{r}') f_2(\vec{r}'),$$

что приводит к следующему результату [Турчин,1963; Гуревич и Тарасов,1965; Lovesey,1984]:

$$G(\vec{r}, t) = \frac{1}{N} \left\langle \sum_m d\vec{r} \delta(\vec{r} + \vec{R}_i(0) - \vec{r}') \times \delta(\vec{r}' - \vec{R}_m(t)) \right\rangle. \quad (4.2.7)$$

Заметим, что дельта-функции, входящие это выражение являются операторами, их надо понимать как операторные интегралы Фурье типа:

$$\delta(\vec{r}' - \vec{R}_m(t)) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\vec{q} \exp(i\vec{q}(\vec{r}' - \vec{R}_m(t))). \quad (4.2.8)$$

Функция (4.2.7) является квантовомеханическим обобщением классической парной пространственно-временной корреляционной функции:

$$G_{\text{кл}}(\vec{r}, t) = \frac{1}{N} \left\langle \sum_m \delta(\vec{r} + \vec{R}_i(0) - \vec{R}_m(t)) \right\rangle. \quad (4.2.9)$$

Здесь  $\vec{R}_i(0)$  и  $\vec{R}_m(t)$  не являются операторами, они обозначают координаты атомов в данные моменты времени. Угловые скобки теперь обозначают только статистическое усреднение. Одна усредненная дельта-функция в (4.2.9) есть вероятность того, что атом  $m$  в момент времени  $t$  находится в точке  $r$  относительно атома  $l$ , в момент времени  $t=0$ . Функция  $G(r, t)$  получится, если просуммировать эту вероятность по  $m$  и усреднить по состояниям  $i$ , и ее смысл в том, что она описывает среднюю плотность атомов в точке  $r$  в момент времени  $t$ , когда другой атом находился в момент времени  $t=0$  в начале координат  $r=0$ . Другими словами, функция  $G_{\text{кл}}(r, t)$  описывает корреляции в положении двух разных атомов в разные моменты времени, она является парной пространственно-временной корреляционной функцией.

В квантовой механике мы имеем дело с не коммутирующими операторами:  $R(0)$ ,  $R(t)$  и соответствующие им величины одновременно неизмеримы. Поэтому пространственно-временная корреляционная функция, как действительная положительная функция, имеющая тот же вероятностный смысл, что и в классическом случае, не существует. Функция  $G(r, t)$  в общем случае комплексна.

Однако бывают случаи, когда квантовыми эффектами можно пренебречь, тогда она сводится к действительной положительной функции  $G_{\text{кл}}(r, t)$ . Возможность такого классического предела и поясняет физический смысл функции  $G(r, t)$ .

Корреляционную функцию  $G(r, t)$  полезно представить еще в другом виде, через операторы плотности атомов в точке  $r$  в момент времени  $t$ :

$$\rho(\vec{r}, t) = \sum_i \delta(\vec{r} - \vec{R}_i(t)). \quad (4.2.10)$$

Тогда корреляционную функцию (4.2.7) можно записать в виде:

$$G(\vec{r}, t) = \frac{1}{N} \int d\vec{r}' \langle \rho(\vec{r}' - \vec{r}) \rho(\vec{r}', t) \rangle. \quad (4.2.11)$$

Таким образом, корреляционная функция  $G(r, t)$  описывает пространственно-временную корреляцию плотностей частиц мишени в двух различных точках пространства, отстоящих друг от друга на расстояние  $r$  в два разные моменты времени, разделенных интервалом времени  $t$ .

Выделим из суммы в (4.2.7) диагональные члены  $l = m$ . Тогда, аналогично (4.2.2) и (4.2.3), получаем два слагаемых:

$$G_d(\vec{r}, t) = \frac{1}{N} \left\langle \sum_{l, m (l \neq m)} \int d\vec{r}' \delta(\vec{r} + \vec{R}_l(0) - \vec{r}') \times \delta(\vec{r}' - \vec{R}_m(t)) \right\rangle. \quad (4.2.12)$$

$$G_s(\vec{r}, t) = \frac{1}{N} \left\langle \sum_i \int d\vec{r}' \delta(\vec{r} + \vec{R}_i(0) - \vec{r}') \times \delta(\vec{r}' - \vec{R}_i(t)) \right\rangle. \quad (4.2.13)$$

Это разбиение имеет простой физический смысл в случае неодинаковых (негождественных) частиц. В этом случае симметрия волновой функции (симметричная или антисимметричная) не имеет значения, что соответствует статистике Больцмана. Функция  $G_d(r, t)$  (индекс  $d$  от слова distinct) имеет такой же смысл, как  $G(r, t)$ , но с тем отличием, что теперь в данный момент времени  $t$  рассматривается плотность, созданная всеми частицами, кроме находящейся в начале координат при  $t = 0$ . Функция  $G_s(r, t)$  является автокорреляционной пространственно-временной корреляционной функцией: в классическом пределе определяет вероятность обнаружения частицы в точке  $r$  в момент времени  $t$ , если при  $t = 0$  она находилась в начале координат.

Итак, функции рассеяния в (4.2.1) выражаются через корреляционные функции  $G(r, t)$  следующим образом:

$$S_{\kappa}(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int d\vec{r} \exp(-i\omega t) \exp(i\vec{q}\vec{r}) G(\vec{r}, t), \quad (4.2.14)$$

$$S_{\text{нк}}(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int d\vec{r} \exp(-i\omega t) \exp(i\vec{q}\vec{r}) G_s(\vec{r}, t). \quad (4.2.15)$$

Функции рассеяния и корреляционные функции связаны преобразованием Фурье. Переменной  $\vec{r}$  (расстоянию в корреляционной функции) соответствует вектор  $\vec{q}$  (переданный импульс) в функции рассеяния. Переменной  $t$  соответствует изменение энергии нейтрона  $\omega$ . Согласно свойству преобразования Фурье,

поведение оригинала при малых значениях аргумента определяет моменты Фурье-образа (в общих чертах, поведение Фурье-образа) при больших аргументах и наоборот. Это означает, что поведение корреляционной функции при малых  $r$  и  $t$  определяет рассеяние с большими изменениями импульса и энергии, а поведение корреляционной функции при больших  $r$  и  $t$  определяет рассеяние с малыми изменениями импульса и энергии.

### § 4.3. Сечения рассеяния

Рассмотрим поведение корреляционной функции  $G(r, t)$  в двух предельных случаях:  $t = 0$  и  $t = \infty$ .

При  $t = 0$  операторы смещений коммутируют и в (4.2.7) можно выполнить интегрирование. В результате получаем

$$G(\vec{r}, 0) = \frac{1}{N} \left\langle \sum_{l,m} \delta(\vec{r} + \vec{R}_l(0) - \vec{R}_m(0)) \right\rangle. \quad (4.3.1)$$

Гейзенберговские операторы координат становятся обычными шредингеровскими. Выделим диагональные члены суммы

$$G_s(\vec{r}, 0) = \delta(\vec{r}), \quad (4.3.2)$$

$$G(\vec{r}, 0) = \delta(\vec{r}) + g(\vec{r}), \quad (4.3.3)$$

где

$$g(\vec{r}) = \frac{1}{N} \sum_{l,m} \left\langle \delta(\vec{r} + \vec{R}_l - \vec{R}_m) \right\rangle \quad (4.3.4)$$

– статическая парная пространственная корреляционная функция, которая описывает распределение частиц в точке  $\vec{r}$  относительно положения произвольно взятой частицы. Эта функция определяет ближний порядок в расположении частиц.

При  $t \rightarrow \infty$  в эргодических системах (§ 4.4) отсутствуют корреляции между частицами в разделенные большим интервалом моменты времени, а также при их предельно большом расстоянии между ними (принцип ослабления корреляций Боголюбова). Поэтому при больших  $|t|$  или  $r$  парная корреляционная функция (4.2.7) или (4.2.11) распадается на произведение средних

$$\begin{aligned} G(\vec{r}, \infty) &= \frac{1}{N} \sum_{l,m} \int d^3\vec{r}' \left\langle \delta[\vec{r}' - \vec{R}_l] \right\rangle \left\langle \delta[\vec{r}' + \vec{r} - \vec{R}_m] \right\rangle = \\ &= \frac{1}{N} \int d^3\vec{r}' \left\langle \rho(\vec{r}') \right\rangle \left\langle \rho(\vec{r}' + \vec{r}) \right\rangle \end{aligned} \quad (4.3.5)$$

Интеграл в (4.3.5) известен как *функция Паттерсона*, фурье-образ которой пропорционален интенсивности рассеяния в дифракционном эксперименте. Заметим, что эксперименты по упругому рассеянию дают информацию об усредненной (не зависящей от времени) структуре мишени в состоянии термодинамического равновесия. При этом надо иметь в виду, что обычные

нейтронные дифрактометры измеряют не чисто упругое рассеяние, так что в эксперименте мы получаем с определенной степенью точности приближенную картину. Попробуем в этом разобраться.

Выделим из функции  $G(r, t)$  ее асимптотическую часть  $G(r, \infty)$

$$G(\vec{r}, t) = G'(\vec{r}, t) + G(\vec{r}, \infty), \quad (4.3.6)$$

где  $G'(\vec{r}, t)$  – зависящая от времени часть, которая равна нулю при  $t \rightarrow \infty$ .

Подставляя (4.3.6) в (4.2.14), получим, что функция рассеяния, а соответственно и сечение, разбивается на сумму двух слагаемых, первое из которых не имеет особенностей, а второе из-за отсутствия зависимости от времени содержит дельта функцию:

$$S(\vec{q}, \omega) = \frac{b_k^2}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) G'(\vec{r}, t) \exp(-i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r} + \\ + b_k^2 \delta(\hbar\omega) \int d\vec{r} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G(\vec{r}, \infty) \quad (4.3.7)$$

Первое слагаемое определяется зависящей от времени частью корреляционной функции

$$G'(\vec{r}, t) = G(\vec{r}, t) - G(\vec{r}, \infty) = \frac{1}{N} \int d\vec{r}' \langle \delta\rho(\vec{r}' - \vec{r}) \delta\rho(\vec{r}', t) \rangle, \quad (4.3.8)$$

где  $\delta\rho(\vec{r}, t) = \rho(\vec{r}, t) - \langle \rho(\vec{r}) \rangle$  – флуктуация плотности. Следовательно, соответствующий этой функции вклад в рассеяние (4.2.1) обусловлен коллективными возбуждениями и определяет *неупругое когерентное рассеяние*. Второе слагаемое в (4.3.7) содержит дельта функцию  $\delta(\hbar\omega)$ , то есть описывает *упругое рассеяние* ( $k_0 = k_1$ ). Из (4.2.1) получаем

$$\frac{d^2 \sigma^k}{d\Omega dE_1} = b_k^2 \frac{k_1}{k_0} \delta(\hbar\omega) \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G(\vec{r}, \infty) d\vec{r}. \quad (4.3.9)$$

Интегрируя по  $dE_1$ , получаем

$$\frac{d^2 \sigma_{\text{уп}}^k}{d\Omega} = b_k^2 \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G(\vec{r}, \infty) d\vec{r} = b_k^2 S(\vec{q}). \quad (4.3.10)$$

где  $S(\vec{q})$  – структурный фактор упругого рассеяния. Мы видим, что сечение упругого рассеяния определяется функцией  $G(r, \infty)$ . Это можно понять исходя из базового принципа статистической механики – *принципа ослабления корреляций Боголюбова* и общих принципов квантовой механики. При *абсолютно упругом рассеянии* должны быть абсолютно точно определены начальная и конечная энергии нейтрона, а для этого нужно, чтобы волны рассеивались на мишени бесконечно долго. Поэтому, при любом времени релаксации за время, в течение которого происходит процесс рассеяния, в эргодической системе успеет установиться асимптотическое распределение  $G(r, \infty)$ .

Подставим в (4.3.10) выражение для коррелятора  $G(\vec{r}, \infty)$  (4.3.5)

$$\frac{d^2 \sigma_{\text{уп}}^{\text{к}}}{d\Omega} = b_{\text{к}}^2 \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) \rho(\vec{r}' - \vec{r}) \rho(\vec{r}') d\vec{r}' d\vec{r}. \quad (4.3.11)$$

Введем вместо  $\vec{r}$  переменную  $\vec{r}'' = \vec{r}' - \vec{r}$ , формулу (4.3.11) получим в виде

$$\frac{d^2 \sigma_{\text{уп}}^{\text{к}}}{d\Omega} = b_{\text{к}}^2 \left| \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) \rho(\vec{r}) d\vec{r} \right|^2. \quad (4.3.12)$$

Таким образом, *упругое когерентное рассеяние* измеряет усредненную структуру в равновесном состоянии. В нем не содержится информации о предыдущих конфигурациях. Для систем с дальним порядком, например, для регулярной кристаллической решетки (§ 3.3) сечение рассеяния имеет вид брэгговских пиков при  $\vec{q} = 2\pi\vec{g}_n$ , где  $\vec{g}_n$  – векторы обратной решетки. Если в системе отсутствует дальний порядок, например, в жидкости, то средняя плотность постоянна (не зависит от  $r$ ,  $\langle \rho(\vec{r}) \rangle = \rho = N/V$ ) и из формулы (4.3.12) следует появление дельта функции  $\delta(\vec{q})$ . А это означает отсутствие упругого когерентного рассеяния, так как рассеяние без изменения волнового вектора не является рассеянием. Исключение составляет рассеяние вперед.

Рассмотрим теперь некогерентное рассеяние. Представление (4.3.6) касается и автокорреляционной функции:

$$G_s(\vec{r}, t) = G'_s(\vec{r}, t) + G_s(\vec{r}, \infty). \quad (4.3.13)$$

Первое слагаемое описывает неупругое рассеяние, второе – упругое некогерентное. Аналогично (4.3.10) получаем

$$\frac{d^2 \sigma_{\text{уп}}^{\text{нк}}}{d\Omega} = b_{\text{к}}^2 \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G_s(\vec{r}, \infty) d\vec{r}. \quad (4.3.14)$$

Для автокорреляционной функции при  $t \rightarrow \infty$  получаем

$$G_s(\vec{r}, \infty) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N d\vec{r}' \langle \delta(\vec{r} + \vec{R}_i(0) - \vec{r}') \rangle \times \langle \delta(\vec{r}' - \vec{R}_i(t)) \rangle, \quad (4.3.15)$$

Вводим  $p_i(\vec{r}')$  – вероятность нахождения  $i$ -й частицы в точке  $\vec{r}'$ , которая, как и  $\rho(\vec{r}')$ , не зависит от времени,

$$p_i(\vec{r}') = \langle \delta(\vec{r}' - \vec{R}_i(t)) \rangle. \quad (4.3.16)$$

Подставляет (4.3.16) в (4.3.15):

$$G_s(\vec{r}, \infty) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \int d\vec{r}' p_i(\vec{r}' - \vec{r}) p_i(\vec{r}'), \quad (4.3.17)$$

Для однородной системы  $p_i(\vec{r}') = \frac{1}{V}$ , откуда

$$G_s(\vec{r}, \infty) = \frac{1}{V}, \quad (4.3.18)$$

и стремится к нулю, когда объем системы  $V \rightarrow \infty$ . Таким образом, если атомы не локализованы в областях, сравнимых с длиной волны нейтрона, то упругого

некогерентного рассеяния не будет. Для локализованных в этом смысле атомов, как в твердых кристаллических и аморфных телах без диффузии,  $G_s(\vec{r}, \infty) \neq 0$ .

Допустим, что распределение вероятности нахождения атома около своего положения  $\vec{R}_i^{(0)}$  одинаково для всех атомов, т.е.

$$p_l(\vec{r}') = p(\vec{r}' - \vec{R}_i^{(0)}). \quad (4.3.19)$$

Подставляя (4.3.19) в (4.3.17), видим, что усреднение по  $l$ , содержащееся в (4.3.17), ничего не меняет, и мы имеем

$$G_s(\vec{r}, \infty) = \int d\vec{r}' p(\vec{r}' - \vec{r}) p(\vec{r}'). \quad (4.3.20)$$

Подставляя это выражение в (4.3.14), получаем:

$$\frac{d^2 \sigma_{\text{ун}}^{\text{нк}}}{d\Omega} = b_x^2 \left| \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) p(\vec{r}) d\vec{r} \right|^2. \quad (4.3.21)$$

Как уже отмечалось, для измерения чисто упругого рассеяния требуется определение в процессе эксперимента энергии как падающего, так и рассеянного нейтрона, чтобы отделить процессы с  $\omega = 0$ . Однако на практике установки для упругого рассеяния, дифрактометры, при заданной длине волны обычно фиксируют данные на детекторе вдоль направления  $\vec{k}_1$ , не уделяя внимания энергии нейтрона. Полученные таким образом данные практически всегда есть результат *полного рассеяния*, которое не является, вообще говоря, упругим, поскольку  $|\vec{k}_1|$  изменяется при фиксированном детектором угле и условие  $k_0 = k_1$  не выполняется. Однако на практике отклонение не так уж велико, так что вполне приемлемым оказывается *статическое приближение* при условии, что энергия передачи (неупругость) мала по сравнению с начальной энергией.

Рассмотрим статическое приближение подробнее [Турчин, 1963].

Разность между корреляционной функцией  $G(\vec{r}, t)$  и ее асимптотическим значением, даваемым формулой (4.3.5), и описывает парные корреляции между положениями частиц. Эта разность зависит от  $\vec{r}$  и  $t$  и стремится к нулю, когда  $r$  или  $|t|$  стремятся к бесконечности. Наличие частицы в момент времени  $t = 0$  в точке  $\vec{r} = 0$  оказывает возмущающее действие на движение остальных частиц в некоторой области пространства вблизи точки  $r = 0$  и в течение некоторого интервала времени до и после момента  $t = 0$ . Размеры этой области – радиус действия корреляций – обозначим через  $r_0$ , а длительность интервала времени, в течение которого имеют место корреляции – время релаксации корреляций – обозначим через  $t_0$ . При  $r \gg r_0$  или  $t \gg t_0$  функция  $G(\vec{r}, t)$  имеет асимптотический вид (4.3.5).

Согласно свойствам преобразования Фурье радиус действия  $r_0$  и время релаксации  $t_0$  определяют по порядку величины изменения импульса  $\hbar/r_0$  и



энергии  $\hbar/t_0$  тех процессов рассеяния, на которых сказываются коллективные свойства системы. Посылая на рассеивающую систему нейтроны (и вообще любые частицы) с импульсом порядка  $\hbar/r_0$ , мы можем быть уверены, что картина рассеяния в широком интервале углов будет отражать пространственные корреляции в мишени.

Интегрируя левую и правую части уравнения (4.2.14) по  $d\omega$  и используя (4.3.3), получаем

$$\int S_k(\vec{q}, \omega) d\omega = \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G(\vec{r}, 0) d\vec{r} = 1 + \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) g(\vec{r}) d\vec{r}. \quad (4.3.22)$$

Таким образом, интеграл по  $d\omega$  от функции когерентного рассеяния целиком определяется чисто пространственной функцией парных корреляций  $g(\vec{r})$  достаточно знать лишь  $\int S_k(\vec{q}, \omega) d\omega$ , а не саму функцию рассеяния  $S_k(\vec{q}, \omega)$ . Так как  $h\omega$  имеет смысл потери энергии нейтроном при рассеянии, возникает вопрос, нельзя ли выразить через  $g(\vec{r})$  угловое распределение  $d\sigma_k/d\Omega$  когерентного рассеяния. В формулу (4.2.1) для  $d^2\sigma_k/d\Omega dE_1$  входит множитель  $k_1/k_0$ , который зависит от  $\omega$ , поэтому  $d\sigma_k/d\Omega$  не сводится к (4.3.22). Но если изменение энергии нейтрона при рассеянии мало по сравнению с начальной энергией нейтрона, т.е. сечение существенно отлично от нуля только при  $|\hbar\omega| \ll E_0$ , то в (4.2.1) можно положить

$$\frac{k_1}{k_0} \approx 1. \quad (4.3.23)$$

В этом и заключается статическое приближение. Подставляя (4.3.23) в (4.2.1), интегрируя по  $dE_1$  и используя (4.3.22), получаем

$$\frac{d\sigma_k}{d\Omega} = b_k^2 \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G(\vec{r}, 0) d\vec{r} = b_k^2 \left[ 1 + \int \exp(-i\vec{q}\vec{r}) g(\vec{r}) d\vec{r} \right]. \quad (4.3.24)$$

Аналогичным образом для некогерентного рассеяния в статическом приближении получаем

$$\int S_{\text{нк}}(\vec{q}, \omega) d\omega = 1, \quad (4.3.25)$$

$$\frac{d\sigma_{\text{нк}}}{d\Omega} = b_{\text{нк}}^2. \quad (4.3.26)$$

Обсудим интерпретацию условия (4.3.23) на языке корреляционных функций.

Рассмотрим случай, когда изменение энергии порядка  $\hbar/t$  приводит к незначительным изменениям импульса, так что можно положить  $k_0 \approx k_1$ . Этот случай имеет место, если

$$t \ll t_0. \quad (4.3.27)$$

Условие (4.3.27) эквивалентно условию (4.3.23), но выражено на языке корреляционных функций и имеет ясный физический смысл: если время

нахождения рассеивающегося нейтрона в области корреляций много меньше времени релаксации системы в целом, то нейтрон не успеет почувствовать движения атомов мишени. При рассеянии происходит как бы мгновенное фотографирование положения атомов, поэтому сечение рассеяния зависит только от статической корреляционной функции. Отсюда и название статистического приближения. Еще раз подчеркнем, что чисто упругое рассеяние отражает усредненную структуру в равновесном состоянии. Статическое приближение применимо с высокой точностью в случае рентгеновских лучей и электронов. Для нейтронов статическое приближение применимо, если их энергия значительно превышает температуру среды и некоторую характерную энергию колебаний атомов. При этом потеря энергии по порядку величины такая же, как и при рассеянии на свободном атоме – это случай *глубоко неупругого рассеяния* надтепловых (горячих) нейтронов. Измерение статической парной функции распределения теперь вполне адекватно для большинства случаев, однако, обычно нужно вводить поправки. Для кристаллических твердых тел – это учет диффузного рассеяния, а также неупругого рассеяния на колебаниях решетки. Для жидкостей и разупорядоченных материалов – это поправки на неупругое и квазиупругое рассеяние и *поправки Плачека* [Турчин,1963]. В этих случаях эффективным бывает *импульсное приближение* (см. дальше § 5.4).

В заключение этого параграфа выпишем окончательные формулы для сечений рассеяния.

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_k = \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_k^{yn} + \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_k^{ny} \quad (4.3.28)$$

и

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_{нк} = \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_k^{yn} + \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_k^{ny}, \quad (4.3.29)$$

где

$$\begin{aligned} \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_k^{yn} &= Nb_k^2 \delta(\hbar\omega) \int d\vec{r} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G(\vec{r}, \infty) = \\ &= b_k^2 \delta(\hbar\omega) \left| \int d\vec{r} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) \langle p(\vec{r}) \rangle \right|^2 \end{aligned} \quad (4.3.30)$$

Для сечения когерентного рассеяния в объеме получаем

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_k^{yn} = b_k^2 \left| \int d\vec{r} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) \langle p(\vec{r}) \rangle \right|^2 \quad (4.3.31)$$

и

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_k^{ny} = Nb_k^2 \frac{k_1}{k_0} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \int d\vec{r} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G(\vec{r}, t). \quad (4.3.32)$$

Аналогично

$$\begin{aligned}
\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_{\text{нк}}^{\text{уп}} &= Nb_{\text{нк}}^2 \delta(\hbar\omega) \int d\vec{r} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G(\vec{r}, \infty) = \\
&= b_{\text{к}}^2 \delta(\hbar\omega) \int d\vec{r} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) \langle p(\vec{r}) \rangle \times \\
&\times \sum_I \int d\vec{r}' \langle \delta(\vec{r} - \vec{r}' + \vec{R}_I) \rangle \langle \delta(\vec{r}' - \vec{R}_I) \rangle
\end{aligned} \quad (4.3.33)$$

Следовательно, в объеме

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{нк}}^{\text{уп}} = b_{\text{нк}}^2 \sum_I \left| \langle \exp(i\vec{q}\vec{R}_I) \rangle \right|^2. \quad (4.3.34)$$

И наконец,

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1}\right)_{\text{к}}^{\text{нр}} = N \frac{k_1}{k_0} b_{\text{к}}^2 \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(-i\omega t) \int d\vec{r} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) G'_s(\vec{r}, t). \quad (4.3.35)$$

Формулы (4.3.28) – (4.3.35) получены для химически однородной одноатомной среды мишени. Однако они легко обобщаются на смеси.

#### § 4.4. Корреляционные функции

Сечение рассеяния отражает реакцию мишени на взаимодействие с нейтронами и, согласно формуле Ван Хова, определяется вызванными этим взаимодействием флуктуациями, которые заключены в корреляционной функции  $G(r, t)$ . Корреляционная функция (4.2.11) характеризует термодинамические свойства мишени и никак не зависит от параметров взаимодействия, ее вычисление – задача, в общем случае, квантовой статистической механики. Прямое вычисление корреляционных функций формально возможно с использованием цепочки уравнений Боголюбова, но практически для реальных систем это нерешаемая задача. Обычно используют теорию линейной реакции, полагая, что система находится в слабо неравновесном состоянии, основанием чему служит малое возмущение мишени медленными нейтронами. Линейное приближение в статистической механике эквивалентно борновскому приближению в теории рассеяния. Основой для вычисления корреляционной функции  $G(r, t)$  и соответственно функции рассеяния  $S(q, \omega)$ , служит флуктуационно-диссипационная теорема. Флуктуационно-диссипационными теоремами называют соотношения между функциями отклика, определяющими реакцию системы на внешнее возмущение, и равновесными флуктуациями. В литературе используют различные варианты функций отклика: динамические восприимчивости, функции реакции, функции релаксации, функции Грина, которые вычисляются разными методами. В принципе все они дают одинаковые (или близкие) результаты, поэтому использование того или иного метода – дело вкуса (точнее, чему Вас научили). Мы будем использовать один из вариантов вычисления корреляционных функций, основанный на методе уравнений движения для двухвременных термодинамических функций Грина, введенных в

статистическую механику Н.Н.Боголюбовым и С.В.Тябликовым [Боголюбов и Тябликов,1959]. Этот метод нам представляется (с учетом приведенной выше оговорки) наиболее удобным в практических приложениях.

#### 4.4.1. Условие детального баланса

При описании взаимодействия медленных нейтронов с веществом мы пользуемся большим числом упрощений, которые, однако, как бы это не казалось странным, весьма неплохо отражают реальность. Одним из таких упрощений является представление мишени в виде бесконечной среды без утечки и поглощения нейтронов. В такой системе нейтроны находятся в условиях термодинамического равновесия с мишенью и нейтронный спектр сохраняет вид распределения Максвелла. Условие термодинамического равновесия накладывает симметричное ограничение на сечение неупругого рассеяния в виде *условия детального баланса*: сколько нейтронов с энергией  $E_0$  рассеивается в энергию  $E_1$ , столько же будет рассеиваться из энергии  $E_1$  в энергию  $E_0$  [Carpenter and Loong,2015],

$$\phi(E_0) \frac{\partial \sum_{scatt} (E_0 \rightarrow E_1)}{\partial E_1} = \phi(E_1) \frac{\partial \sum_{scatt} (E_1 \rightarrow E_0)}{\partial E_0}. \quad (4.4.1)$$

Невыполнение этого условия открывало бы путь к вечному двигателю.

Далее мы рассмотрим формулировку условия детального баланса в формализме корреляционных функций.

Рассмотрим временные корреляционные функции общего вида:

$$F_{BA}(t'-t) = \langle B(t') A(t) \rangle, \quad F_{AB}(t-t') = \langle A(t) B(t') \rangle. \quad (4.4.2)$$

Заметим, что в статистическом равновесии корреляционные функции (4.4.2) в силу инвариантности шпура относительно циклической перестановки сомножителей зависят только от разности времен  $t-t'$ , что позволяет ввести их представление Фурье:

$$\langle B(t') A(t) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} J_{BA}(\omega) \exp(i\omega(t'-t)) d\omega. \quad (4.4.3)$$

В (4.4.3) сделаем замену переменных:

$$t-t' \rightarrow t'-t + (i\hbar\beta), \quad (4.4.4)$$

что приведет к следующему соотношению:

$$\left\langle B(0) A\left(t + \frac{i\hbar}{\theta}\right) \right\rangle = \langle A(t) B(0) \rangle, \quad (4.4.5)$$

в чем можно убедиться непосредственной проверкой, произведя циклическую перестановку операторов под знаком шпура. Действительно, после перестановки, которая перемещает оператор  $B$  на первое место, получим

$$\begin{aligned} \langle A(t)B(0) \rangle &= Z^{-1} \text{Sp} \left\{ \exp(-\beta H) \exp(iHt/\hbar) A \exp(-iHt/\hbar) B \right\} = \\ &= Z^{-1} \text{Sp} \left\{ B \exp \left[ - \left( \beta - \frac{it}{\hbar} \right) H \right] A \exp \left[ \left( \beta - \frac{it}{\hbar} \right) H \right] \exp(-\beta H) \right\}, \end{aligned} \quad (4.4.6)$$

то есть соотношение (4.4.5). Таким образом, подстановка (4.4.4) в (4.4.3) даст

$$\langle A(t)B(t') \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} J_{BA}(\omega) \exp\left(\frac{\hbar\omega}{\theta}\right) \exp(i\omega(t'-t)) d\omega. \quad (4.4.7)$$

Соотношения (4.4.3) и (4.4.7) называются спектральными представлениями временных корреляционных функций, а  $J_{AB}(\omega)$  и  $J_{BA}(\omega)$  – спектральными интенсивностями этих функций. Спектральные представления для временных корреляционных функций и функций Грина (§ 4.4, п. 4.4.2) в статистической механике впервые применялись в работе [Callen and Welton, 1951] по теории флуктуаций и шумов. В настоящее время они широко используются в теории систем многих частиц. Общий вывод соотношений (4.4.2), (4.4.5) основан на технике теории дисперсионных соотношений, который дает общее выражение для спектральной интенсивности [Зубарев, 1971; Аксенов и Тропин, 2020]:

$$J_{BA}(\omega) = \frac{2\pi}{Q} \sum_{n,m} \exp(-\beta E_n) (\psi_m^* \hat{B} \psi_n) (\psi_n^* \hat{A} \psi_m) \delta\left(\frac{E_m - E_n}{\hbar} - \omega\right), \quad (4.4.8)$$

где  $\psi_{nm}$  и  $E_{nm}$  – собственные функции и собственные значения гамильтониана системы:  $H\psi_n = E\psi_n$ .

Сравнивая соотношения (4.4.3) и (4.4.7), получаем важное свойство спектральной интенсивности:

$$J_{AB}(-\omega) = J_{BA}(\omega) \exp(\beta\hbar\omega), \quad (4.4.9)$$

Применяя это соотношение к корреляционным функциям в (4.2.1), получаем общее соотношение для функций рассеяния (одинаково для когерентного и некогерентного)

$$S(\vec{q}, -\omega) = [\exp(-\hbar\beta\omega)] S(-\vec{q}, \omega), \quad (4.4.10)$$

где  $\beta = 1/k_B T$  – обратная температура. Это соотношение и есть *соотношение детального баланса*.

Еще раз сформулируем достаточно простое физическое содержание этого важного соотношения. После того как система в целом (нейтроны плюс мишень) приходит в тепловое равновесие, число нейтронов, которые после многократных столкновений приобретают дополнительную энергию, должно быть равно числу нейтронов, которые отдали такую же энергию. Соотношение (4.4.10) является математическим оформлением того факта, что вероятность потери нейтроном энергии  $\hbar\omega = E_0 - E_1$  равна вероятности приобретения такой же энергии, умноженной на  $\exp(\hbar\omega\beta)$ . Это явление носит общий характер в спектроскопии, когда происходят процессы излучения и поглощения. В оптике они называются процессами Стокса (стоксовские и антистоксовские линии в оптических

спектрах). Симметрия детального баланса имеет большое значение при планировании и выполнении экспериментов по неупругому рассеянию. Потеря энергии нейтроном обычно доминирует над приобретением при комнатной и выше температурах.

Подчеркнем, что условие детального баланса выполняется в условиях термодинамического равновесия, поэтому надо соблюдать осторожность, если есть условия для появления неравновесных состояний. Известный пример – жидкий водород, охлаждаемый от комнатной температуры, скажем, до 20 К. В равновесном состоянии преобладает содержание пара-водорода (над орто-водородом). Однако в начале охлаждения его концентрация составляет одну треть от концентрации орто-водорода. Поэтому требуются многие часы при охлаждении для достижения равновесной концентрации пара-водорода.

Отметим некоторые общие свойства корреляционных функций (соответственно и функций рассеяния). Обычно в статистической механике изучаемые системы из-за их больших размеров имеют непрерывный (или практически непрерывный) спектр, поэтому суммирование по состояниям в (4.4.8) может «снять» дельта функцию. Следовательно, спектральная интенсивность не является дельта функцией в реальных системах, она может быть таковой лишь в частных случаях, условно говоря, идеальных систем, в которых элементарные возбуждения не затухают. В реальных, *эргодических системах* (точнее, при наличии перемешивания) имеет место затухание корреляций со временем:

$$\lim_{|t-t'|\rightarrow\infty} \langle A(t)B(t') \rangle = \langle A \rangle \langle B \rangle. \quad (4.4.11)$$

Имеется в виду, что  $A$  и  $B$  – не интегралы движения. Из этого соотношения следует, что, если  $\langle A \rangle = 0$  или  $\langle B \rangle = 0$ , то

$$\lim_{|t-t'|\rightarrow\infty} \langle A(t)B(t') \rangle = 0. \quad (4.4.12)$$

Важно при этом отметить, что временные корреляционные функции для любой конечной системы, т.е. до предельного перехода  $V \rightarrow \infty$ , почти периодические функции времени. Эта квантово-механическая теорема аналогична классической теореме возврата Пуанкаре. Затухание корреляционных функций для реальных систем может быть получено лишь после предельного перехода  $V \rightarrow \infty$  ( $V/N = \text{const}$ ), который как бы исключает длинные циклы Пуанкаре.

Связь спектральной интенсивности для стационарного случайного процесса со свойствами эргодичности устанавливается теоремой Вигнера-Хинчина, согласно которой спектральная интенсивность  $J_{BA}(\omega)$  для эргодических систем всюду конечна, включая  $\omega = 0$ . В этом случае среднее по времени от корреляционных функций равно нулю. При записи фурье-представления для КФ предполагалось, что  $\langle \hat{A} \rangle = 0$  и  $\langle \hat{B} \rangle = 0$ . Поэтому введем операторы флуктуаций:

$$\Delta A = A - \langle A \rangle, \quad \Delta B = B - \langle B \rangle. \quad (4.4.13)$$

В этих переменных среднее по времени от корреляционных функций

$$\begin{aligned} \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T dt \langle \Delta \hat{B}(t) \Delta \hat{A} \rangle &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T dt \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega J_{BA}(\omega) \exp(-i\omega t) = \\ &= \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega J_{BA}(\omega) \delta(\omega) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} J_{BA}(0) = 0 \end{aligned} \quad (4.4.14)$$

При изучении модельных систем в статистической механике, однако, может оказаться, что это соотношение не выполняется, т.е. корреляции определенных динамических величин со временем не затухают, и система по отношению к ним не обладает свойством эргодичности. В этом случае предельный переход в (4.3.14) дает конечную величину  $C_{AB}$ , которая называется *константой неэргодичности*. Пользуясь спектральным представлением (4.3.8), получаем:

$$C_{BA} = \lim_{t \rightarrow \infty} \langle \Delta \hat{B}(t) \Delta \hat{A} \rangle = \frac{1}{Q} \sum_{n,m} e^{-\frac{E_n}{\theta}} (\psi_n^* \Delta \hat{B} \psi_m) (\psi_m^* \Delta \hat{A} \psi_n) \Big|_{E_n=E_m}. \quad (4.4.15)$$

Соотношение (4.4.15) дает явное выражение константы неэргодичности, которое указывает на вырождение собственных состояний системы, допускающих ненулевые матричные элементы для операторов  $\Delta \hat{B}$  и  $\Delta \hat{A}$  между состояниями с одинаковой энергией,  $E_n = E_m$ . Это выражение прямо связано с наличием в системе определенных интегралов движения.

Таким образом, спектральную интенсивность (4.4.8) для неэргодических систем следует записывать в виде:

$$J_{BA}(\omega) = J'_{BA}(\omega) + 2\pi C_{BA} \delta(\omega), \quad (4.4.16)$$

где  $J'_{BA}(\omega)$  – регулярная часть, удовлетворяющая условию (4.4.14), а нерегулярная часть  $C_{BA}$  определяется соотношением (4.4.15).

#### 4.4.2. Функции отклика

Общее решение задачи о линейной реакции квантово-статистического ансамбля на механическое возмущение  $H_t^1$  выражается формулами Кубо [Аксенов и Тропин, 2020]. Фактические вычисления весьма не просты, поскольку эти формулы содержат средние от динамических переменных в разные моменты времени и требуют решения динамической задачи. Для систем с малым параметром в ряде случаев, как в нашем случае, удается найти решение.

Формулы Кубо описывают запаздывающую реакцию средних значений динамической величины  $A(t)$  на переменное возмущение  $H_t^1$ , которое обычно записывают в виде

$$H_t^1 = -BF(t) = \exp(\varepsilon t) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \exp(-i\omega t) BF(\omega), \quad (4.4.17)$$

где  $B$  – операторная часть взаимодействия,  $\varepsilon \rightarrow 0^+$  (адиабатическое включение, см. § 8.5). Эта реакция имеет причинный характер, так как возмущение оказывает

воздействие только при  $t' \leq t$ , то есть в прошлые моменты времени. Поэтому используют разрывную функцию

$$\theta(t) = \begin{cases} 1 & \text{при } t > 0 \\ 0 & \text{при } t < 0 \end{cases}, \quad (4.4.18)$$

которая позволяет формально распространить интегрирование до  $+\infty$ . После использования этого приема, первая формула Кубо принимает вид:

$$\overline{A(t)} = - \int_{-\infty}^{\infty} dt' \langle \langle A(t) B(t') \rangle \rangle F(t'), \quad (4.4.19)$$

где справа стоит запаздывающая ( $r$ ) двухвременная термодинамическая функция Грина, определение которой, общее с опережающей ( $a$ ) функцией Грина, имеет вид [Боголюбов и Тябликов, 1959; Зубарев, 1971]:

$$\langle \langle A(t) B(t') \rangle \rangle^{r,a} = \mp i \theta[\pm(t-t')] \langle [A(t), B(t')]_{\eta} \rangle. \quad (4.4.20)$$

Коммутатор  $\eta = +1$  или антикоммутатор ( $\eta = -1$ )  $[A, B]_{\eta} = AB - \eta BA$  построен из операторов  $A(t)$ ,  $B(t)$  в представлении Гейзенберга  $A(t) = \exp(iHt) A \exp(-iHt)$ <sup>\*)</sup>. Статистическое среднее определено для равновесного состояния системы с гамильтонианом  $H$ :

$$\langle AB \rangle = \text{Sp}[AB \exp(-\beta H)] / \text{Sp}[\exp(-\beta H)], \quad \beta = \frac{1}{k_B T}. \quad (4.4.21)$$

Будем предполагать далее, что  $\langle A \rangle = 0$  и  $\langle B \rangle = 0$  (в противном случае вводим  $A' = A - \langle A \rangle = 0$  и т.д.), так что для функции Грина (4.4.20) можно написать фурье-разложение по времени:

$$G_{AB}(t-t') = \langle \langle A(t) B(t') \rangle \rangle = \int \frac{d\omega}{2\pi} \exp[-i\omega(t-t')] = \langle \langle A|B \rangle \rangle_{\omega}. \quad (4.4.22)$$

Учитывая уравнение движения для оператора в представлении Гейзенберга,  $idA/dt = [A, H]$ , для фурье-компоненты функции Грина (4.4.22) получаем:

$$\omega \langle \langle A|B \rangle \rangle_{\omega} = \langle [A, B]_{\eta} \rangle + \langle \langle [A, H]|B \rangle \rangle_{\omega} = \langle [A, B]_{\eta} \rangle - \langle \langle A|[B, H] \rangle \rangle_{\omega}. \quad (4.4.23)$$

Повторное дифференцирование функции Грина по времени позволяет получить цепочку уравнений, приближенное решение которых дает функцию Грина и корреляционную функцию.

Для фурье-компоненты  $\overline{A(\omega)}$ , определенной аналогично (4.4.17), получим:

$$\overline{A(\omega)} = - \langle \langle A|B \rangle \rangle_{\omega}^2 F(\omega) = \chi_{AB}(\omega) F(\omega). \quad (4.4.24)$$

Здесь введена динамическая восприимчивость  $\chi_{AB}(\omega)$ , описывающая линейную реакцию системы на внешнее поле  $F(\omega)$ .

<sup>\*)</sup> здесь и далее полагаем  $\hbar = 1$ .



Релаксация системы после выключения внешнего поля (для  $F(t) = F_0\theta(t)$ ) описывается *функцией релаксации Кубо*

$$\overline{A(t > 0)} = \Phi_{AB}(t) F_0 = \Phi_{AB}(t) [\Phi_{AB}(0)]^{-1} \overline{A(0)}, \quad (4.4.25)$$

где согласно (4.4.19)

$$\Phi_{AB}(t) = - \int_{-\infty}^0 dt' \exp(\delta t') \langle \langle A(t) B(t') \rangle \rangle = \beta(A(t), B) - \beta \langle A^0 B^0 \rangle. \quad (4.4.26)$$

Здесь мы ввели скалярное произведение Кубо-Мори

$$\beta(A(t), B) = \int_0^\beta d\lambda \langle \exp(\lambda H) A(t) \exp(-\lambda H) B \rangle \quad (4.4.27)$$

И инвариантную часть операторов  $A^0, B^0$  по отношению к эволюции с гамильтонианом  $H$ :

$$\langle A^0 B^0 \rangle = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_0^T \exp(-t/T) \langle A(t) B \rangle dt. \quad (4.4.28)$$

Начальное значение функции релаксации определяет *статическую (изолированную или кубовскую) восприимчивость* системы:

$$\Phi_{AB}(0) = - \int_{-\infty}^0 dt' \langle \langle A(0) B(t') \rangle \rangle^2 = - \langle \langle A|B \rangle \rangle_{\omega=0}^2 = \chi_{AB}(\omega=0) = \chi_{AB}^0, \quad (4.4.29)$$

которая, согласно (4.4.22), в общем случае не совпадает с *изотермической восприимчивостью* системы:

$$\chi_{AB}^T = \beta(A, B) = \chi_{AB}^0 + \beta \langle A^0 B^0 \rangle. \quad (4.4.30)$$

Для эргодических систем среднее по времени в (4.4.24) совпадает со статистическим средним:

$$\langle A^0 B^0 \rangle = \langle A \rangle \langle B \rangle$$

и (согласно принятому условию:  $\langle A \rangle = 0, \langle B \rangle = 0$ ) для  $\chi_{AB}^T = \chi_{AB}^0$ . Функция релаксации связана с *динамической восприимчивостью* уравнением:

$$\chi_{AB}(\omega) = - \int_0^{\infty} dt \exp(i\omega t - \varepsilon t) \frac{d}{dt} \Phi_{AB}(t) = \Phi_{AB}(0) - \omega \Phi_{AB}(\omega), \quad (4.4.31)$$

или

$$\Phi_{AB}(\omega) = \frac{1}{\omega} [\chi_{AB}^0 - \chi_{AB}(\omega)], \quad (4.4.32)$$

где введен лапласовский образ функции релаксации

$$\Phi_{AB}(\omega) = -i \int_0^{\infty} dt \exp(i\omega t - \varepsilon t) \Phi_{AB}(t) = \beta \left( A, \frac{1}{\omega - H + i\varepsilon} B \right). \quad (4.4.33)$$

Последняя формула позволяет развить эффективную теорию возмущений, пользуясь разложением резольвенты  $R(z) = (z - H)^{-1}$  в виде цепной дроби на

основе метода проекционных операторов Мори, и вычислить согласно (4.4.28) динамическую восприимчивость системы (например [Götze and Lücke, 1976]).

#### 4.4.3. Флуктуационно-диссипационные соотношения

Пользуясь фурье-разложением для временных корреляционных функций (4.4.3), можно получить спектральное представление для функции Грина (4.4.22) в виде [Боголюбов и Тябликов, 1959; Зубарев, 1971]:

$$\langle\langle A|B\rangle\rangle_{E\pm i\varepsilon} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} J_{AB}(\omega) \frac{\exp(\beta\omega) - \eta}{E - \omega \pm i\varepsilon}, \quad (4.4.34)$$

где  $+i\varepsilon$  относится к запаздывающей и  $-i\varepsilon$  – опережающей функции Грина. Это соотношение позволяет установить связь функции Грина и корреляционной функции (спектральная теорема) в виде:

$$J_{BA}(\omega) = i(\exp(\beta\omega) - \eta)^{-1} [\langle\langle A|B\rangle\rangle_{\omega+i\varepsilon} - \langle\langle A|B\rangle\rangle_{\omega-i\varepsilon}], \quad (4.4.35)$$

и написать дисперсионное соотношение для функции Грина и динамической восприимчивости:

$$\text{Re } \chi_{AB}(\omega) = -\frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{\omega - \omega'} \text{Im } \chi_{AB}(\omega'). \quad (4.4.36)$$

Согласно (4.4.16) для *неэргодических систем* спектральная интенсивность состоит из двух слагаемых. Теперь мы можем их определить. Регулярная часть  $J'_{AB}(\omega)$  определяется спектральной теоремой (4.4.35), а сингулярная часть согласно (4.4.30) равна

$$\beta C_{AB} = \chi_{AB}^T - \chi_{AB}^0. \quad (4.4.37)$$

Этот постоянный вклад необходимо учитывать при определении корреляционной функции на основе спектральной теоремы (4.4.35). Величину  $C_{AB}$  можно определить также, пользуясь спектральными представлениями для функции Грина из условия:

$$2C_{BA} = \lim_{\omega \rightarrow 0} \left[ \omega \langle\langle A|B\rangle\rangle_{\omega, \eta=-1} \right], \quad (4.4.38)$$

то есть по полюсу антикоммуляторной функции Грина.

Функции Грина имеют определенные свойства симметрии относительно перестановки операторов и замены аргументов. Непосредственно из определения (4.4.20) получаем:

$$\langle\langle A(0)B(t')\rangle\rangle^2 = \eta \langle\langle B(t')A(0)\rangle\rangle^a, \quad (4.4.39)$$

или для фурье-компонент в (4.4.22)

$$\langle\langle A|B\rangle\rangle_{\omega}^2 = \eta \langle\langle B|A\rangle\rangle_{-\omega}^a. \quad (4.4.40)$$

Комплексное сопряжение функции Грина дает

$$\left( \langle\langle A|B\rangle\rangle_{\omega} \right)^* = \eta \langle\langle A^+|B^+\rangle\rangle_{-\omega}^2 = \langle\langle B^+|A^+\rangle\rangle_{\omega}^a. \quad (4.4.41)$$

Эти свойства симметрии позволяют установить следующие соотношения для диссипационной части динамической восприимчивости:

$$\begin{aligned}\chi''_{AB}(\omega) &= -\chi''_{BA}(-\omega), \\ \chi''_{AB}(\omega) &= -\chi''_{A^*B^*}(-\omega) = \chi''_{B^*A^*}(\omega).\end{aligned}\quad (4.4.42)$$

Для динамической восприимчивости от сопряженных операторов получаем соотношение:

$$\frac{1}{\omega} \chi''_{AA^*}(\omega) = \frac{1}{2\omega} J_{A^*A}(\omega) (\exp(\beta\omega) - 1) \geq 1, \quad (4.4.43)$$

так как согласно спектральному представлению  $J_{A^*A}(\omega) \geq 0$ . Поэтому статическая восприимчивость

$$\chi_{AA^*}^0 = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{\omega} \chi''_{AA^*}(\omega) \geq 0. \quad (4.4.44)$$

Это соотношение является условием термодинамической устойчивости системы. Используя операцию инверсии времени, получаем также:

$$\varepsilon_A \varepsilon_B J_{AB}(\omega) = J_{AB}^*(\omega) = J_{B^*A^*}(\omega) \quad (4.4.45)$$

или

$$\varepsilon_A \varepsilon_B \langle\langle A|B \rangle\rangle_{\omega} = \langle\langle B^+|A^+ \rangle\rangle_{\omega}, \quad (4.4.46)$$

где  $\varepsilon_A, \varepsilon_B = \pm 1$  в зависимости от четности (+1) или нечетности (-1) операторов  $A, B$  при обращении времени. Для операторов одинаковой четности спектральная интенсивность  $J_{AB}(\omega)$  вещественна, что позволяет выразить ее через мнимую часть функции Грина в (4.4.35):

$$J_{AB}(\omega) = -[\exp(\beta\omega) - \eta]^{-1} 2 \operatorname{Im} \langle\langle A|B \rangle\rangle_{\omega+i\varepsilon}. \quad (4.4.47)$$

Выражения (4.4.35) и (4.4.47) являются представлениями флуктуационно-диссипационной теоремы в статистической механике [Зубарев, 1971], которая обеспечивает связь корреляционной функции флуктуаций переменных  $A$  и  $B$  и диссипативным откликом, представленным либо динамической восприимчивостью  $\chi_{AB}(\omega)$ , либо двухвременной функцией Грина  $\langle\langle A|B \rangle\rangle_{\omega}$  (4.4.20) или функцией релаксации Кубо (4.4.26). Все они связаны между собой и могут быть выражены одна через другую.

Выражение (4.4.47) имеет общий вид. Перепишем его для корреляционной функции  $\langle\rho_{\vec{q}}(0)\rho_{-\vec{q}}(t)\rangle$ . Используя определение (4.4.2) и свойство (4.4.9), получим выражение для функции рассеяния

$$S(\vec{q}, \omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\operatorname{Im} \chi(\vec{q}, \omega)}{1 - \exp(-\beta\omega)}. \quad (4.4.48)$$

Эта формула устанавливает связь между экспериментальными данными по рассеянию нейтронов и модельным описанием исследуемого явления. Последнее, как уже отмечалось в начале этого параграфа, может быть основано на

использовании какой-то из трех упомянутых функций отклика. Нам представляется наиболее удобным метод двухвременных термодинамических функций Грина, который состоит в следующем [Боголюбов и Тябликов, 1959; Зубарев, 1971]. Для модельного гамильтониана записывается уравнение движения типа (4.4.23). Для расщепления этой цепочки уравнений используется приближение, соответствующее задаче и вычисляется функция Грина (или динамическая восприимчивость). С помощью флуктуационно-диссипационной теоремы (4.4.47) вычисляется корреляционная функция флуктуаций и соответственно функция рассеяния. Такой модельный расчет используется для понимания полученных экспериментальных данных и для предсказания новых экспериментов. В следующей главе мы рассмотрим конкретные примеры.

#### Рекомендуемая литература к главе 4

Аксенов В.Л., Тропин Т.В. (2020), *Лекции по теории конденсированного состояния*, М.: Физический факультет МГУ имени М.В.Ломоносова.

Боголюбов Н.Н. (2006), *Собрание научных трудов в 12 томах*, М.: Наука, т. 6.

Зубарев Д.Н. (1971), *Неравновесная статистическая термодинамика*, М.: Наука.

Lovesy S. (1984), *Theory of neutron scattering from condensed matter, Vol. 1, Nuclear scattering*, Oxford: Clarendon press.

Van Hove (1954), *Phys. Rev.*, **95**, 249.

## ГЛАВА 5. ЯДЕРНОЕ РАССЕЙЯНИЕ НЕЙТРОНОВ В КОНДЕНСИРОВАННОМ ВЕЩЕСТВЕ

Самое простое определение конденсированного состояния вещества – это твердые тела и жидкости. Уточнение простых (часто интуитивных) определений твердого и жидкого состояний до определенного момента помогают дать ответы на вопросы, как они устроены и каковы механизмы происходящих в них явлений. Однако последующие уточнения приводят, по существу, к бесконечному расширению определений и часто к терминологической путанице, как, например, с аморфными телами, которые твердые, но по структуре и физическим свойствам – жидкости. Поэтому еще в конце прошлого столетия было введено понятие «мягкого» (или частично упорядоченного) вещества, обозначая этим термином все, что не является кристаллами и простыми жидкостями.

Современная тенденция исследований конденсированного вещества состоит в движении от изучения кристаллов и простых жидкостей к мягкому веществу и биологическим структурам. В картине жизни на молекулярном уровне, которую мы получаем из молекулярной биологии, можно увидеть много общего с физикой мягкого вещества. Большинство материалов и компонент в этой области состоят из макромолекул (главное исключение – это вода). Образование биологических структур происходит в результате самосборки на молекулярном уровне и для своего описания требует привлечения методов неравновесной статистической механики. В то же время ряд слабо неравновесных свойств твердых тел и особенно мягкого вещества является характерным и для живой материи.

Отмеченная тенденция, естественно, отразилась и на исследованиях методами рассеяния нейтронов, однако, изложение связанных с ней тем потребовало бы обсуждения слишком большого количества специализированных вопросов из разных наук, что не входит в нашу задачу. Поэтому мы для демонстрации развитого в предыдущих главах формализма описания ядерного рассеяния медленных нейтронов рассмотрим базовые модели физики конденсированного вещества, к которым относятся в первую очередь модели идеальных кристаллов и квантовых жидкостей, а также некоторые вопросы описания движений молекул в простых классических жидкостях и молекулярных кристаллах.

### § 5.1. Рассеяние нейтронов в кристаллической решетке

В этом параграфе мы рассмотрим в качестве примера использования развитого ранее формализма хорошо известную задачу о динамике кристаллической решетки, описание которой можно найти в любом учебнике по квантовой теории твердого тела. Основные идеи теории рассеяния медленных

нейтронов кристаллами были развиты сразу после работы Ферми [Fermi, 1936]. Отметим только пионерские работы [Wick, 1937; Померанчук, 1938], список последующих работ можно найти в книгах [Ахиезер и Померанчук, 1950; Гуревич и Тарасов, 1965; Изюмов и Черноплеков, 1983]. Рассматривались гармонические и слабоангармонические кристаллы. Теория сильноангармонических кристаллов, включая область плавления, квантовые кристаллы и структурные фазовые переходы, была разработана позже (см., например, [Аксенов и Плакида, 1978]). Последовательное изложение применения метода двухвременных функций Грина для этих задач, включая и рассеяние нейтронов, дано в книгах [Аксенов и др., 1984; Аксенов и Тропин, 2020].

### 5.1.1. Частоты нормальных колебаний решетки

Приведем без деталей расчетов необходимые формулы. Рассмотрим кристаллическую решетку, состоящую из  $N$  элементарных ячеек в объеме  $V$ . Для простоты будем рассматривать простую ячейку Браве, имеющую по одному атому массой  $M$  на элементарную ячейку. Координаты узлов кристаллической решетки определяются равновесными положениями атомов и могут быть записаны в виде

$$\vec{l} = l_1 \vec{a}_1 + l_2 \vec{a}_2 + l_3 \vec{a}_3, \quad (5.1.1)$$

где  $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$  – базисные векторы элементарной ячейки, определяющие трансляционные свойства кристаллической решетки,  $l_1, l_2, l_3$  – целые числа. Мгновенные положения атомов запишем в виде:

$$\vec{R}_l = \vec{l} + \vec{u}_l = \langle \vec{R}_l \rangle + \vec{u}_l, \quad (5.2)$$

где  $\vec{u}_l$  – смещение атома из равновесного положения в узле решетки  $\vec{l}$ , среднее  $\langle \dots \rangle$  вычисляется по равновесному состоянию кристалла.

При описании динамики кристаллической решетки обычно предполагают, что потенциальная энергия взаимодействия всех атомов кристаллической решетки  $U$  может быть представлена в виде функции, зависящей только от мгновенных положений атомов  $\vec{R}_l$ . Поскольку смещения атомов  $\vec{u}_l$ , вызванные тепловыми флуктуациями обычно малы, потенциальную энергию разлагают в ряд Тейлора по смещениям. Ограничимся простейшим приближением – гармоническим, когда оставляют только квадратичные члены в этом разложении:

$$H_0 = \sum_l \frac{p_l^2}{2M} + \frac{1}{2} \sum_{lm} \sum_{\alpha\beta} \Phi_{lm}^{\alpha\beta} u_l^\alpha u_m^\beta, \quad (5.1.3)$$

где  $\vec{p}_l = i\hbar (\partial/\partial \vec{u}_l)$  – оператор импульса<sup>\*)</sup>,  $\alpha, \beta = x, y, z$ . Силовые постоянные

<sup>\*)</sup> Далее мы для упрощения записи будем полагать  $\hbar = 1$ .

$$\Phi_{lm}^{\alpha\beta} = \left[ \frac{\partial^2 U(\{\vec{R}_l\})}{\partial R_l^\alpha \partial R_m^\beta} \right]_{R_l=l_i} = \frac{\partial^2 U_0(\{\vec{l}_i\})}{\partial l_\alpha \partial l_\beta}. \quad (5.1.4)$$

Введем функцию Грина смещений атомов из положений равновесия

$$G_{ll'}^{\alpha\beta}(t-t') = \langle \langle u_l^\alpha(t) | u_{l'}^\beta \rangle \rangle^r = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \exp(-i\omega(t-t')) G_{ll'}^{\alpha\beta}(\omega), \quad (5.1.5)$$

где операторы смещения

$$u_l^\alpha(t) = \exp(iH_0 t) u_l^\alpha \exp(-iH_0 t). \quad (5.1.6)$$

Трансляционная симметрия кристаллов позволяет разложить функцию Грина в ряд Фурье по векторам обратного пространства:

$$G_{ll'}^{\alpha\beta}(\omega) = \frac{1}{MN} \sum_{\vec{k}_j} e_{\vec{k}_j}^\alpha e_{\vec{k}_j}^\beta \exp(i\vec{k}(\vec{l} - \vec{l}')) G_{\vec{k}_j}^{\alpha\beta}(\omega), \quad (5.1.7)$$

где проведено также разложение по взаимно ортогональным векторам поляризации, образующим полную систему:

$$\sum_{\alpha} e_{\vec{k}_j}^\alpha e_{\vec{k}_j'}^\alpha = \delta_{jj'}, \quad (5.1.8a)$$

$$\sum_j e_{\vec{k}_j}^\alpha e_{\vec{k}_j'}^\beta = \delta_{\alpha\beta}. \quad (5.1.8б)$$

Здесь индекс  $j$  пробегает значения 1, 2, 3, соответствующие трем независимым поляризациям колебаний атомов. Суммирование по векторам  $\vec{k}$  в (5.1.7) ограничено первой зоной Бриллюэна, определяемой базисом трех векторов в обратном пространстве:

$$\vec{b}_1 = \frac{[\vec{a}_2 \cdot \vec{a}_3]}{v}, \quad \vec{b}_2 = \frac{[\vec{a}_3 \cdot \vec{a}_1]}{v}, \quad \vec{b}_3 = \frac{[\vec{a}_1 \cdot \vec{a}_2]}{v}, \quad (5.1.9)$$

где  $v = \vec{a}_1 [\vec{a}_2 \cdot \vec{a}_3] = \frac{V}{N}$  – объем элементарной ячейки в прямом пространстве. При

этом, вследствие трансляционной симметрии решетки в прямом пространстве

$$G_{ll'}^{\alpha\beta} = G_{(\vec{l}+\vec{a})(\vec{l}'+\vec{a})}^{\alpha\beta} = G_{(\vec{l}-\vec{a})(\vec{l}'-\vec{a})}^{\alpha\beta},$$

где  $\vec{a}$  – произвольный вектор решетки (5.1.1), следует периодичность функции Грина в обратном пространстве

$$G_{\vec{k}_j} = G_{(\vec{k}+\vec{g}_n)_j}, \quad (5.1.10)$$

где  $\vec{g}_n$  – произвольный вектор обратной решетки, построенной на базисных векторах (5.1.9):

$$\vec{g}_n = 2\pi(n_1 \vec{b}_1 + n_2 \vec{b}_2 + n_3 \vec{b}_3), \quad (5.1.11)$$

где  $n_1, n_2, n_3$  – целые числа. Плоские волны в (5.1.7) образуют ортогональный и полный набор функций:

$$\frac{1}{N} \sum_l \exp(i(\vec{k} - \vec{q})\vec{l}) = \Delta(\vec{k} - \vec{q}) = \begin{cases} 1 & k = \vec{q} + \vec{g}_n \\ 0 & k \neq \vec{q} + \vec{g}_n \end{cases}, \quad (5.1.12a)$$

$$\frac{1}{N} \sum_k \exp(ik(\vec{l} - \vec{l}')) = \delta_{l,l'}. \quad (5.1.12б)$$

Получим уравнение для функции Грина (5.1.7). Дифференцируем функцию (5.1.5) дважды по времени. В полученном уравнении перейдем к фурье-представлению по времени и по векторам обратного пространства (5.1.7). Учитывая ортогональность векторов поляризации (5.1.8 а) и плоских волн (5.1.12 а), получаем уравнение для функции Грина  $G_{\vec{k}_j}(\omega)$  в виде

$$(\omega^2 - \omega_{\vec{k}_j}^2) G_{\vec{k}_j}(\omega) = 1, \quad (5.1.13)$$

где частоты нормальных колебаний  $\omega_{\vec{k}_j}$  определяются из уравнения на собственные значения:

$$\omega_{\vec{k}_j}^2 e_{\vec{k}_j}^\alpha = \frac{1}{M} \sum_{\alpha\beta} \Phi_{0l}^{\alpha\beta} \exp(i\vec{k}\vec{l}) e_{\vec{k}_j}^\beta. \quad (5.1.14)$$

Для каждого значения вектора  $\vec{k}$  в зоне Бриллюэна это уравнение определяет три независимых решения для частоты  $\omega_{\vec{k}_j}^2$ , соответствующих трем поляризациям  $j=1, 2, 3$ .

Таким образом, решение для функции Грина (5.1.7), (5.1.14) может быть записано в виде

$$\begin{aligned} G_{ll'}^{\alpha\beta}(\omega) &= \frac{1}{NM} \sum_{k_j} e_{k_j}^\alpha e_{k_j}^\beta \exp(i\vec{k}(\vec{l} - \vec{l}')) \frac{1}{\omega^2 - \omega_{k_j}^2} = \\ &= \frac{1}{NM} \sum_{k_j} e_{k_j}^\alpha e_{k_j}^\beta \exp(i\vec{k}(\vec{l} - \vec{l}')) \frac{1}{2\omega_{k_j}} \left\{ \frac{1}{\omega - \omega_{k_j}} - \frac{1}{\omega + \omega_{k_j}} \right\}, \end{aligned} \quad (5.1.15)$$

то есть в гармоническом приближении функция Грина имеет простые полюсы  $\omega_1 = \omega_{k_j}$  и  $\omega_2 = -\omega_{k_j}$ . Следовательно, в гармоническом приближении функция Грина (5.1.15) описывает распространение незатухающих колебаний решетки в виде плоских волн с частотами  $\omega_{k_j}$ :

$$G_{ll'}^{\alpha\beta}(t) = -i\theta(t) \frac{1}{NM} \sum_{k_j} \frac{e_{k_j}^\alpha e_{k_j}^\beta}{2\omega_{k_j}} \exp(i\vec{k}(\vec{l} - \vec{l}')) (\exp(-i\omega_{k_j}t) - \exp(i\omega_{k_j}t)).$$

Спектральная плотность частот колебаний решетки определяется мнимой частью функции Грина:



$$\begin{aligned}
g(\omega) &= \frac{1}{3N} \sum_{k_j} \delta(\omega - \omega_{k_j}) = \frac{2\omega}{3N} \sum_{k_j} \delta(\omega^2 - \omega_{k_j}^2) \Big|_{\omega>0} = \\
&= \frac{2\omega}{3N} \sum_{k_j} \left[ -\frac{1}{\pi} \operatorname{Im} G_{k_j}(\omega + i\varepsilon) \right]_{\omega>0} = \frac{2M\omega}{3N} \sum_{l\alpha} \left[ -\frac{1}{\pi} \operatorname{Im} G_{ll}^{\alpha\alpha}(\omega + i\varepsilon) \right]_{\omega>0} .
\end{aligned} \quad (5.1.16)$$

Величина  $g(\omega)d\omega$  определяет число нормальных колебаний в интервале  $d\omega$ , соответствующих таким значениям  $\{\vec{k}_j\}$ , для которых  $\omega_{k_j}$  лежит в интервале  $(\omega, \omega + d\omega)$ . Спектральная плотность частот используется при переходе от суммы по векторам  $\vec{k}$  в зоне Бриллюэна к интегралу по частотам:

$$\frac{1}{3N} \sum_{k_j} f(\omega_{k_j}) = \int_0^{\omega_l} g(\omega) d\omega f(\omega), \quad (5.1.17)$$

где  $\omega_l$  – максимальная частота колебаний атомов в решетке.

Спектральная плотность корреляционной функции, соответствующая функции Грина (5.1.13) или (5.1.15), имеет вид

$$\begin{aligned}
J_{k_j}(\omega) &= \frac{1}{\exp(\omega/\theta) - 1} \left[ -2 \operatorname{Im} G_{k_j}(\omega + i\varepsilon) \right] = \\
&= \frac{\pi}{\omega_{k_j}} \left[ N_{k_j} \delta(\omega - \omega_{k_j}) + (1 + N_{k_j}) \delta(\omega + \omega_{k_j}) \right],
\end{aligned} \quad (5.1.18)$$

где  $N_{k_j} = N(\omega_{k_j}) = \exp((\omega_{k_j}/\theta) - 1)^{-1}$  – среднее число фононов.

Определим *средний квадрат смещения атома* в узле решетки:

$$\begin{aligned}
\langle (\vec{u}_l)^2 \rangle &= \frac{1}{NM} \sum_{\alpha k_j} e_{k_j}^{\alpha} e_{k_j}^{\alpha} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} J_{k_j}(\omega) = \\
&= \frac{1}{NM} \sum_{k_j} \frac{1}{2\omega_{k_j}} (2N_{k_j} + 1) = \frac{3}{M} \int_0^{\omega_l} \frac{d\omega}{2\pi} g(\omega) \operatorname{cth} \frac{\omega}{2\theta} .
\end{aligned} \quad (5.1.19)$$

Итак, динамика кристаллической решетки определяется несколькими величинами, среди которых важную роль играют частоты колебаний  $\omega_{k_j}$ , спектральная плотность  $g(\omega)$  и средний квадрат смещений атома в узле решетки. Посмотрим теперь, как их можно найти из экспериментов по рассеянию нейтронов.

### 5.1.2. Формула Ван Хова

Перепишем формулу Ван Хова в борновском приближении (4.1.5), (4.1.7) для нашего случая

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} = \frac{k_1}{k_0} S(\vec{q}, \omega), \quad (5.1.20)$$

где функция рассеяния

$$S(\vec{q}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt}{2\pi} \exp(-i\omega t) \sum_m b_l b_m \exp(-i\vec{q}(\vec{l} - \vec{m})) \langle \exp(-i\vec{q}\vec{u}_l) \exp(i\vec{q}\vec{u}_m(t)) \rangle, \quad (5.1.21)$$

где  $u_i^\alpha(t)$  – представление Гейзенберга для оператора смещения  $u_i^\alpha$  с гамильтонианом решетки  $H_0$ ,  $\omega = E_0 - E_1 = (k_0^2 - k_1^2)/2m$  – изменение энергии и  $\vec{q} = \vec{k}_0 - \vec{k}_1$  – переданный импульс при рассеянии нейтронов ( $\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1$ )<sup>\*</sup>.

В гармоническом приближении среднее значение от произведения экспонент в (5.1.21) может быть вычислено согласно теореме Бейкера-Хаусдорфа:

$$\exp(A) \exp(B) = \exp(A+B) \exp\left[\frac{1}{2}[A, B]\right],$$

где  $A$  и  $B$  такие операторы, коммутатор которых  $[A, B]$  не является оператором,  $c$  – число. Учитывая, что для операторов смещения в гейзенберговском представлении с гармоническим гамильтонианом (5.1.3)  $[u_i^\alpha, u_m^\beta(t)]$  не является оператором, получаем:

$$\langle \exp(-i\vec{q}\vec{u}_l) \exp(i\vec{q}\vec{u}_m(t)) \rangle = \exp(-i\vec{q}(\vec{u}_l - \vec{u}_m(t))) \exp\left(\frac{1}{2}[\vec{q}\vec{u}_l, \vec{q}\vec{u}_m(t)]\right).$$

Пользуясь далее правилом вычисления средних в гармоническом приближении

$$\langle \exp(i\vec{q}\vec{u}_l) \rangle = \exp\left\{-\frac{1}{2}\langle (\vec{q}\vec{u}_l)^2 \rangle\right\},$$

получаем, вводя формально  $[\vec{q}\vec{u}_l, \vec{q}\vec{u}_m(t)] = \langle [\vec{q}\vec{u}_l, \vec{q}\vec{u}_m(t)] \rangle$ , следующее выражение для среднего:

$$\begin{aligned} \langle \exp(-i\vec{q}\vec{u}_l) \exp(i\vec{q}\vec{u}_m(t)) \rangle &= \\ &= \exp\left\{-\frac{1}{2}\langle (\vec{q}(\vec{u}_l - \vec{u}_m(t)))^2 \rangle + \frac{1}{2}\langle [\vec{q}\vec{u}_l, \vec{q}\vec{u}_m(t)] \rangle\right\} =, \quad (5.1.22) \\ &= \exp(-W_l(q)) \exp(-W_m(q)) \exp\left\{\langle (\vec{q}\vec{u}_l)(\vec{q}\vec{u}_m(t)) \rangle\right\} \end{aligned}$$

где множитель, не зависящий от времени,

$$\exp(-W_l(q)) = \exp\left\{-\frac{1}{2}\langle (\vec{q}\vec{u}_l)^2 \rangle\right\} \quad (5.1.23)$$

Называется *фактором Дебая-Валлера*. Он описывает уменьшение амплитуды рассеяния вследствие тепловых (или нулевых, при  $T=0$ ) флуктуаций атома

<sup>\*</sup> При определении знака вектора рассеяния в литературе имеется неоднозначность (см. § 2.3). В теории дифракции из геометрических построений (§ 3.3) следует  $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$ . Это определение мы использовали раньше. В теории неупругого рассеяния чаще используют это определение с обратным знаком. Принципиального значения это не имеет – меняется только знак экспонент. Принципиально то, что все функции зависят от разности  $\vec{k}_1$  и  $\vec{k}_0$ , что является следствием борновского приближения (§ 2.3).

вблизи положений равновесия. Подставляя (5.1.23) в (5.1.22) для функции рассеяния получим выражение:

$$S(\vec{q}, \omega) = \sum_{lm} b_l b_m \exp\left(-i\vec{q}(\vec{l} - \vec{m}) - W_l(q) - W_m(q)\right) \times \left\{ \delta(\omega) + \frac{1}{2\pi} \langle \vec{q}\vec{u}_l | \vec{q}\vec{u}_m \rangle_{-\omega} + \dots \right\}, \quad (5.1.24)$$

где первый член описывает упругое рассеяние  $E_0 = E_1$ , второй член – *однофононное рассеяние*, определяемое фурье-компонентой корреляционной функции,

$$\begin{aligned} \langle \vec{q}\vec{u}_l | \vec{q}\vec{u}_m \rangle_{\omega} &= \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(i\omega t) \langle (\vec{q}\vec{u}_l)(\vec{q}\vec{u}_m(t)) \rangle = \\ &= \frac{1}{\exp(\omega/\theta) - 1} \left[ -2 \operatorname{Im} \langle \vec{q}\vec{u}_m | \vec{q}\vec{u}_l \rangle_{\omega+i\epsilon}^r \right]. \end{aligned} \quad (5.1.25)$$

Остальные члены в разложении (5.1.24) соответствуют *многофононному рассеянию*, которое обычно дает равномерный по частоте  $\omega$  фон. Когерентная же часть однофононного рассеяния имеет вид острых максимумов при частотах  $\omega$ , соответствующих энергии фононов  $\omega_{k_j}$ .

### 5.1.3. Упругое рассеяние

Упругое рассеяние при  $|\vec{k}_0| = |\vec{k}_1|$  имеет вид

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} \right)^{\text{уп}} = S^{\text{уп}}(\vec{q}, \omega) = \delta(\omega) \exp(-2W(q)) \sum_{lm} b_l b_m \exp\left(-i\vec{q}(\vec{l} - \vec{m})\right). \quad (5.1.26)$$

В идеальном кристалле решетка состоит из атомов одного сорта, и поэтому фактор Дебая-Валлера не зависит от узла решетки:

$$W(q) = \frac{1}{2} \langle (\vec{q}\vec{u}_l)^2 \rangle = \frac{1}{2NM} \sum_{kj} \frac{(\vec{q}\vec{e}_{kj})^2}{2\omega_{kj}} \operatorname{cth} \frac{\omega_{kj}}{2\theta}. \quad (5.1.27)$$

Однако длина рассеяния нейтрона на ядре  $b_l$  может зависеть от спина ядра или изотопического состава решетки. Поэтому удобно ввести средние длины:

$$\bar{b} = \frac{1}{N} \sum_{l=1}^N b_l, \quad \bar{b}^2 = \frac{1}{N} \sum_{l=1}^N b_l^2, \quad (5.1.28)$$

где черта сверху означает усреднение по изотопическому и спиновому распределению ядер решетки.

Записывая сумму в (5.1.26) в виде

$$\sum_{lm} b_l b_m \exp\left(-i\vec{q}(\vec{l} - \vec{m})\right) = \sum_{l=m} b_l^2 + \sum_{l \neq m} b_l b_m \exp\left(-i\vec{q}(\vec{l} - \vec{m})\right),$$

и производя усреднение согласно (5.1.28), получим

$$\begin{aligned} \sum_{lm} \overline{b_l b_m} \exp(-i\vec{q}(\vec{l} - \vec{m})) &= N\overline{b^2} + (\overline{b})^2 \sum_{l \neq m} \exp(-i\vec{q}(\vec{l} - \vec{m})) = \\ &= N(\overline{b^2} - (\overline{b})^2) + N^2 (\overline{b})^2 \Delta(\vec{q}) = Nb_{\text{нк}}^2 + N^2 b_{\text{к}}^2 \Delta(\vec{q}) \end{aligned} \quad (5.1.29)$$

где

$$\Delta(\vec{q}) = \frac{1}{N} \sum_T \exp(-i\vec{q}\vec{l}) = \begin{cases} 1 & \text{при } \vec{q} = \vec{g}_n \\ 0 & \text{при } \vec{q} \neq \vec{g}_n \end{cases},$$

$\vec{g}_n$  – вектор обратной решетки (5.1.11).

Следовательно, сечение упругого рассеяния (5.1.26) разделяется на два члена:

а) когерентное рассеяние

$$\frac{1}{N} S_{\text{к}}^{\text{yn}}(\vec{q}, \omega) = \delta(\omega) \exp(-2W(q)) b_{\text{к}}^2 N \Delta(\vec{q}), \quad (5.1.30a)$$

б) некогерентное рассеяние

$$\frac{1}{N} S_{\text{нк}}^{\text{yn}}(\vec{q}, \omega) = \delta(\omega) \exp(-2W(q)) b_{\text{нк}}^2, \quad (5.1.30б)$$

Некогерентное рассеяние не зависит от угла рассеяния  $\Omega$  и дает однородный фон.

Когерентное рассеяние происходит при тех значениях вектора  $\vec{q}$ , которые соответствуют векторам обратной решетки (уравнение Лауэ 3.3.7):

$$\vec{q} = 2\pi(n_1\vec{b}_1 + n_2\vec{b}_2 + n_3\vec{b}_3) = \vec{k}_0 - \vec{k}_1; \quad k_0 = k_1, \quad (5.1.31)$$

Это же условие может быть записано в виде условия дифракции Брэгга-Вульфа (см. § 3.3).

Таким образом, когерентное упругое рассеяние позволяет определить вектора обратной решетки согласно (5.1.31), по которым можно построить решетку в прямом пространстве.

#### 5.1.4. Неупругое рассеяние

Однофононное неупругое рассеяние согласно (5.1.24), (5.1.25) имеет вид

$$\begin{aligned} S^{\text{ny}}(\vec{q}, \omega) &= \sum_{lm} b_l b_m \exp(-i\vec{q}(\vec{l} - \vec{m})) \exp(-2W(q)) \times \\ &\times [1 + N(\omega)] \times \left[ -\frac{1}{\pi} \text{Im} \langle \langle (\vec{q}\vec{u}_m) | (\vec{q}\vec{u}_l) \rangle \rangle_{\omega+i\varepsilon} \right] \end{aligned} \quad (5.1.32)$$

где мы учли, что  $\text{Im} G_{lm}^{\alpha\beta}(-\omega + i\varepsilon) = -\text{Im} G_{lm}^{\alpha\beta}(\omega + i\varepsilon)$  и ввели  $N(\omega) = \exp((\omega/\theta) - 1)^{-1}$ ,  $[1 + N(\omega)] = -N(-\omega)$ .

Воспользуемся теперь решением для функции Грина, полученным ранее в (5.1.15).

$$-\frac{1}{\pi} \text{Im} \langle \langle (\vec{q}\vec{u}_m) | (\vec{q}\vec{u}_l) \rangle \rangle_{\omega+i\epsilon} = \frac{1}{NM} \sum_{kj} \frac{\vec{q}\vec{e}_{qj}}{2\omega_{kj}} \exp(i\vec{k}(\vec{m}-\vec{l})) \times \quad (5.1.33)$$

$$\times [\delta(\omega - \omega_{kj}) - \delta(\omega + \omega_{kj})]$$

Подставляя (5.1.33) в (5.1.32), получаем:

$$S^{\text{нв}}(\vec{q}, \omega) = \exp(-2W(q)) \sum_{lm} b_l b_m \frac{1}{NM} \sum_{kj} \exp(-i(\vec{q} + \vec{k})(\vec{l} - \vec{m})) \times \quad (5.1.34)$$

$$\times \frac{(\vec{q}\vec{e}_{qj})}{2\omega_{kj}} \left\{ (1 + N_{kj}) \delta(\omega - \omega_{kj}) + N_{kj} \delta(\omega + \omega_{kj}) \right\}$$

Произведем теперь усреднение по спиновому и изотопическому распределению ядер, как в (5.1.29):

$$\frac{1}{N} \sum_{lm} \overline{b_l b_m} \exp(-i(\vec{q} + \vec{k})(\vec{l} - \vec{m})) = b_{\text{нк}}^2 + N b_{\text{к}}^2 \Delta(\vec{q} + \vec{k}).$$

Следовательно, сечение неупругого рассеяния состоит из двух частей:

а) когерентное неупругое рассеяние

$$\frac{1}{N} \left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_1} \right)_{\text{к}}^{\text{нв}} = \frac{k_1}{k_0} \frac{b_{\text{к}}^2}{M} \exp(-2W(q)) \sum_j \frac{(\vec{q}\vec{e}_{qj})}{2\omega_{qj}} \left\{ \begin{array}{l} (1 + N_{qj}) \delta(\omega - \omega_{qj}) \\ N_{qj} \delta(\omega + \omega_{qj}) \end{array} \right\}, \quad (5.1.35)$$

б) некогерентное неупругое рассеяние

$$\frac{1}{N} \left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_1} \right)_{\text{нк}}^{\text{нв}} = \frac{k_1}{k_0} \frac{b_{\text{нк}}^2}{MN} \exp(-2W(q)) \sum_{kj} \frac{(\vec{q}\vec{e}_{kj})}{2\omega_{kj}} \left\{ \begin{array}{l} (1 + N_{kj}) \delta(\omega - \omega_{kj}) \\ N_{kj} \delta(\omega + \omega_{kj}) \end{array} \right\}, \quad (5.1.36)$$

Верхний член в (5.1.35), (5.1.36) соответствует рассеянию нейтрона с испусканием фонона:  $\omega = E_0 - E_1 = \omega_{qj} > 0$ ; нижний член – рассеянию нейтрона с поглощением фонона:  $\omega = E_0 - E_1 = \omega_{qj} < 0$ ; при этом первый процесс пропорционален  $(1 + N_{qj})$  и может происходить и при нулевой температуре  $\theta = 0$ ,  $N_{qj} \approx \exp(-\omega_{qj}/\theta) \ll 1$ , второй процесс пропорционален  $N_{qj}$  и эффективен только в области температур  $\theta \geq \theta_D$  – температуры Дебая, соответствующей  $\omega_D$  в энергетической шкале.

Некогерентное рассеяние в случае кристаллов с кубической симметрией можно записать в более простом виде. В этом случае в силу свойств кубической симметрии  $(\vec{q}\vec{e}_{kj})^2 = \frac{1}{3} q^2$ , в результате чего в (5.1.36) можно перейти от суммы по векторам  $\vec{k}$  в зоне Бриллюэна к интегралу по фоновым частотам согласно (5.1.16):

$$\frac{1}{3N} \sum_{kj} (\dots) = \int_0^{\omega_D} g(\omega') d\omega' (\dots), \quad (5.1.37)$$

где  $g(\omega)$  – спектральная плотность частот колебаний решетки. Пользуясь (5.1.37), для (5.1.36) получаем:

$$\frac{1}{N} \left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_1} \right)_{\text{нк}}^{\text{нр}} = \frac{k_1}{k_0} b_{\text{нк}}^2 \exp(-2W(q)) \frac{q^2}{2M\omega} \begin{cases} 1 + N(\omega) & \omega > 0 \\ N(\omega) & \omega < 0 \end{cases}. \quad (5.1.38)$$

Следовательно, некогерентное неупругое рассеяние в кристаллах кубической симметрии возможно использовать для прямого определения спектральной плотности частот  $g(\omega)$ .

Для некубического кристалла нет прямой пропорциональности сечения некогерентного рассеяния и функции  $g(\omega)$ . В этом случае измеряют когерентное сечение для трех взаимно ортогональных положений монокристалла, что дает выражение, пропорциональное  $g(\omega)$ . Таким путем можно, в принципе, восстановить функцию распределения частот фоннного спектра для кристаллов любой симметрии. Вопросу измерения функции  $g(\omega)$  было уделено много внимания, поскольку она входит в выражения для всех термодинамических величин, а теоретически вычислить  $g(\omega)$  далеко не всегда удается.

Здесь был рассмотрен простейший случай идеальной кристаллической решетки в гармоническом приближении. В реальных кристаллах всегда есть дефекты решетки и примеси. Кроме этого при высоких температурах становятся существенными ангармонизмы, обусловленные возрастающими флуктуациями (увеличением величины смещений атомов относительно положений равновесия). Все это приводит к уширению пиков рассеяния и может сильно изменить общий вид зависимости сечения (функции) рассеяния от переданной энергии. Эти изменения особенно проявляются в области фазовых переходов.

## § 5.2. Коллективные возбуждения при структурном фазовом переходе

Рассеяние нейтронов сыграло существенную роль в исследованиях фазовых переходов и особенно в понимании механизмов структурных превращений твердых телах, поэтому эта тема достаточно хорошо освещена в литературе [Изюмов и Черноплеков, 1983; Брус и Каули, 1984; Аксенов и др., 1984]. При структурном фазовом переходе происходит спонтанное изменение симметрии кристалла. Вычисляемой и измеряемой характеристикой изменения структуры служит *параметр порядка*, который появляется (исчезает) при температуре фазового перехода). На этом примере можно в достаточно доступной форме показать эволюцию нейтронных спектров в процессе развития флуктуаций в конденсированной среде. Мы рассмотрим базовую модель фазовых переходов – так называемую *решеточную скалярную модель  $\phi^4$*  [Ма, 1980]. В теории динамики кристаллической решетки эта модель последовательно выводится из полного гамильтониана на основе симметричного анализа спектра колебаний и

представляет собой *динамическую микроскопическую модель структурного фазового перехода* в сокращенном пространстве координат, связанных непосредственно с фазовым переходом. Это гамильтониан одной выделенной, а именно *критической моды*. Такой подход аналогичен рассмотрению магнитных систем с помощью спиновых гамильтонианов, когда ограничиваются рассмотрением только части электронных состояний атомов, как, например, в модели Гейзенберга. Гамильтониан модели запишем в виде [Аксенов и др., 1984; Аксенов и Тропин, 2020]:

$$H = \sum_n \left[ \frac{p_n^2}{2M} - \frac{A}{2} x_n^2 + \frac{B}{4} x_n^4 \right] + \frac{1}{4} \sum_{n \neq l} \phi_{nl} (x_n - x_l)^2, \quad (5.2.1)$$

имея в виду, что переменные  $x_n$  являются локальными нормальными координатами критической моды,  $p_n$  – импульс, сопряженный координате  $x_n$ ,  $M$  – эффективная масса критической моды,  $\phi_{nl}$  описывает связь смещений локальных нормальных мод в ячейках  $n$  и  $l$  и определяет дисперсию моды. Модельный гамильтониан (5.2.1) описывает систему гармонически связанных частиц, находящихся в ангармоническом одночастичном потенциале,  $A > 0$ ,  $B > 0$ . Этим он отличается по форме от гамильтониана (5.1.3).

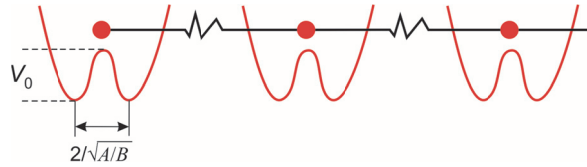


Рис. 5.2.1. Схематическое представление модели (5.2.1) в одномерном случае.

Пространственная размерность модели определяется типом выбранной решетки, на которой задается взаимодействие  $\phi_{nl}$ . Модель (5.2.1) характеризуется двумя энергетическими параметрами: глубиной потенциального минимума:

$$V_0 = \frac{A^2}{4B}, \quad (5.2.2)$$

и относительной энергией связи частиц

$$V_{св} = \frac{d\Phi_0 |A|}{B}, \quad \Phi_0 = \sum_n \phi_{nl}, \quad (5.2.3)$$

где  $d$  – размерность системы, а также параметром квантовости системы

$$\lambda = \frac{\hbar\omega_0}{4V_0}, \quad \hbar\omega_0^2 = \frac{A}{M}. \quad (5.2.4)$$

Параметр  $\lambda \sim (\hbar/\sqrt{M})$  определяет относительную энергию нулевых колебаний.

Если система характеризуется большими нулевыми колебаниями, так что  $\lambda$

больше некоторого критического значения  $\lambda_c$ , то эффективный одночастичный потенциал становится гармоническим и фазовый переход не происходит даже при нулевой температуре.

Рассмотрим коллективные возбуждения в модели. В высокотемпературной (симметричной) фазе при высоких температурах  $T > V_0 = A^2/4B$  все частицы в одночастичном потенциале (рис. 5.2.1) находятся выше горба. При некоторой температуре  $T_c$ , соответствующей фазовому переходу, происходит спонтанное нарушение симметрии, и все частицы переходят в один из минимумов потенциала. Все направо или все налево в зависимости от слабого внешнего воздействия. В соответствии со сказанным введем статические эффективные смещения  $\eta_n = \langle x_n \rangle$ , в одночастичном потенциале в низкосимметричной (несимметричной) фазе, которые играют роль *параметра порядка*: в симметричной фазе  $\eta_n = 0$ . Статические средние  $\langle \dots \rangle$  вычисляются по равновесному состоянию с гамильтонианом (5.2.1). Локальная нормальная координата  $x_n$  принимает вид

$$x_n(t) = \langle x_n \rangle + u_n(t) \equiv \eta_n + u_n(t), \quad (5.2.5)$$

где  $u_n(t)$  – малые относительно  $\eta_n$  смещения частиц, соответствующие колебательному движению.

Будем рассматривать одноосный однодоменный и однородный кристалл. Тогда все смещения в одночастичном потенциале будут одинаковы  $\eta_n = \eta$  (однородный параметр порядка). В силу одноосности модели смещения  $x_n$  относительно положений равновесия в симметричной фазе рассматриваются вдоль одной из осей кристалла, в то время как взаимодействие  $\phi_{nl}$  связывает частицы в трехмерной решетке.

Следуя общей теории самосогласованных фононов [Аксенов и Плакида, 1978] рассмотрим однофононную функцию Грина (ФГ), через которую в конечном счете выражаются наблюдаемые величины,

$$\begin{aligned} G_{nl}(t-t') &= -i\theta(t-t') \langle [u_n(t), u_l(t')] \rangle = \\ &= \langle \langle u_n(t), u_l(t') \rangle \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \exp(-i\omega(t-t')) \langle \langle u_n | u_l \rangle \rangle_{\omega}. \end{aligned} \quad (5.2.6)$$

Для качественного обсуждения нам достаточно общего вида уравнения Дайсона для пространственного преобразования Фурье функции Грина (4.5.43):

$$G_q(\omega) = [m\omega^2 - \tilde{\omega}_q^2 - M_q(\omega)]^{-1}, \quad (5.2.7)$$

где  $\tilde{\omega}_q^2$  – частота колебаний в ренормированном гармоническом приближении



$$\begin{aligned}
m\tilde{\omega}_q^2 &= \Delta^2 + \phi_0 - \phi_q \\
\phi_q &= \sum_{n'} \phi_{nn'} e^{-iq(\bar{r}_n - \bar{r}_{n'})}, \quad \phi_0 = \phi_{q=0}
\end{aligned} \tag{5.2.8}$$

$\Delta^2$  – щель в спектре возбуждений, обусловленная ангармоническим одно-частичным потенциалом

$$\Delta^2 = -A + 3B(\eta^2 + \langle u_n^2 \rangle) = 3B\eta^2 - (A - 3B\langle u^2 \rangle). \tag{5.2.9}$$

Средний квадрат смещений определяется согласно спектральным теоремам и в приближении высоких температур имеет вид

$$\langle u_n^2 \rangle = \frac{1}{mN} \sum_q \frac{1}{2\omega_q} \operatorname{cth} \frac{\omega_q}{T} \approx \frac{T}{N} \sum_q \frac{1}{m\omega_q^2}. \tag{5.2.10}$$

Систему уравнений замыкает уравнение для параметра порядка:

$$B\eta^2 = A - 3B\langle u_n^2 \rangle. \tag{5.2.11}$$

Система уравнений (5.2.8) – (5.2.11) позволяет самосогласованным образом описать поведение параметра  $\eta$  и спектра колебаний  $\omega_q^2$ .

Однофононная функция Грина (5.2.7) описывает реакцию системы на действие внешнего зависящего от времени поля и определяют динамическую восприимчивость системы. Измерение динамической восприимчивости позволяет получить необходимую информацию о динамике структурного фазового перехода. Рассмотрим более детально в схематическом виде общие свойства функций Грина (5.2.7).

Массовый оператор  $M_q(\omega)$  в общем виде содержит действительную и мнимую части:

$$M_q(\omega + i\varepsilon) = \operatorname{Re} M_q(\omega) + i \operatorname{Im} M_q(\omega) \equiv -\sum_q^2(\omega) - i\omega\Gamma_q(\omega + i\delta), \tag{5.2.12}$$

которые характеризуют перенормировку частоты и затухание возбуждения соответственно. Таким образом, функция Грина при учете взаимодействия имеет полюс при комплексном значении переменной  $\omega$

$$m\omega^2 = \omega_q^2 + \sum_q(\omega) \pm i\omega\Gamma_q(\omega + i\delta) \tag{5.2.13}$$

и разрез вдоль действительной оси. Скачок значений функции через действительную ось определяет спектральную интенсивность, которая непосредственно связана с мнимой частью восприимчивости:

$$\chi''(q, \omega) = -\operatorname{Im} G(\omega) = \frac{\omega\Gamma_q}{\left[ \omega_q^2 - \sum_q^2(\omega) - \omega^2 \right]^2 + \omega^2\Gamma_q^2(\omega)}. \tag{5.2.14}$$

Учет массового оператора (взаимодействие в высших порядках) приводит к сдвигу энергии возбуждения, определяемому действительной частью массового оператора  $\sum_q(\omega)$  и появлением конечной ширины уровня  $\Gamma_q(\omega)$ , определяемой мнимой частью массового оператора. В результате учета взаимодействия «время

жизни» фононов в состоянии « $q$ » становится конечным  $\tau_q \sim 1/\Gamma_q$ , так как возникает возможность перехода частиц в другие состояния.

В случае слабого взаимодействия сдвиг энергии возбуждения  $\sum_q(\omega)$  и ширина уровня  $\Gamma_q(\omega)$  вблизи перенормированной энергии возбуждения

$$\Omega_q^2 = \omega_q^2 - \sum_q^2(\Omega_q) \quad (5.2.15)$$

малы:  $\sum_q(\Omega_q) \ll \Omega_q$ ,  $\Gamma_q(\Omega_q) \ll \Omega_q$ . В области частот  $\Omega_q \gg \Gamma_q$  динамическая восприимчивость имеет резонансный характер с максимумами при частотах *мягкой моды*  $\omega \approx \pm \Omega_q$  и полушириной пиков  $\Gamma_q$ . Таким образом, для оценки частоты мягкой моды вдали от точки фазового перехода, когда затухание мало, можно пользоваться ренормированным гармоническим приближением.

По мере приближения к фазовому переходу частота  $\Omega_q$  уменьшается и в области  $\Omega_q \ll \Gamma_q$  спектральная интенсивность принимает релаксационный характер с максимумом при  $\omega \rightarrow 0$

$$\text{Im} G_q(\omega) \approx \frac{\omega \Gamma_q}{\Omega_q^4 + \omega^2 \Gamma_q^2} = \frac{\omega}{\Omega_q^2} \frac{1/\tau_q}{(1/\tau_q)^2 + \omega^2}, \quad (5.2.16)$$

где время релаксации определяет ширину пика квазиупругого рассеяния

$$\frac{1}{\tau_q} = \frac{\Omega_q^2}{\Gamma_q}. \quad (5.2.17)$$

Фазовый переход в системе определяется обращением в ноль обратной статической восприимчивости  $\chi_q^{-1}(\omega=0) = -G_q^{-1}(\omega=0)$ . Отсюда получаем, что при  $T = T_c$

$$\Omega_{qc}^2(T_c) = \omega_{qc}^2(T_c) - \sum_{qc}^2(T_c) = 0. \quad (5.2.18)$$

То есть в точке перехода частота исходной (высокочастотной) моды имеет конечное значение, что позволяет говорить о неполном смягчении мягкой моды. Таким образом, меняется характер критической моды. Она становится релаксационной.

Рассмотрим теперь экспериментальное проявление обсуждаемых явлений. Сечение неупругого когерентного рассеяния нейтронов определяется выражением

$$\frac{1}{N} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{P}{P_0} \sum_{mn'} \bar{b}_n \bar{b}_{n'} S(q, \omega). \quad (5.2.19)$$

Функция рассеяния  $S(q, \omega)$  с помощью флуктуационно-диссипационной теоремы выражается через диссипативную часть  $\chi''(\omega) = \text{Im} \chi(\omega)$  динамической восприимчивости системы, которая определяется запаздывающей ФГ

$$S(q, \omega) = [1 + n(\omega)] \frac{1}{\pi N} [-\text{Im} D_q(\omega)]. \quad (5.2.20)$$

При изучении низкочастотных возбуждений системы можно воспользоваться разложением  $n(\omega) = e^{\omega/T} - 1 \approx T/\omega$ , тогда

$$S(q, \omega) = (T/\pi N \omega) [-\text{Im} D_q(\omega)]. \quad (5.2.21)$$

С учетом предыдущего рассмотрения видим, что при  $T \rightarrow T_c$  функция рассеяния претерпевает эволюцию: от резонансной к релаксационной. Экспериментальная картина схематически изображена на рис. 5.2.2.

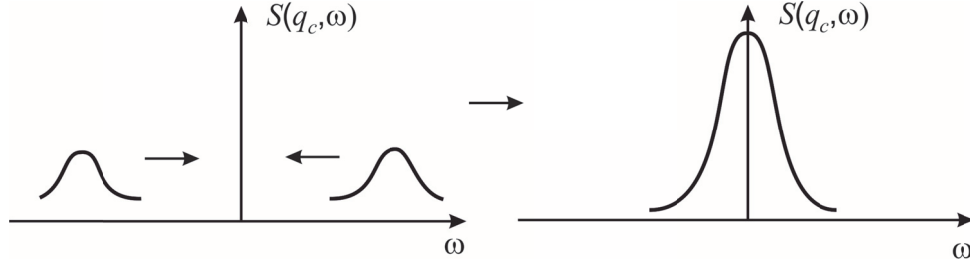


Рис. 5.2.2. Эволюция мягкой моды при  $T \rightarrow T_c$ .

Более строгое рассмотрение показывает, что  $M_q(\omega)$  имеет свою структуру. В результате в режиме медленной релаксации

$$S_q(\omega) = \frac{T}{\pi} \frac{\sum_q^2 \gamma_q}{\omega^2 [\omega^2 - \omega_q^2]^2 + \gamma_q [\omega^2 - \Omega_q^2]}, \quad (5.2.22)$$

где  $\gamma = \Gamma/\omega_q$ . Эта функция имеет три максимума. В области  $\omega \sim \omega_q \gg \gamma_q$  основной вклад дает первое слагаемое в знаменателе и

$$S_1(q, \omega) \approx \frac{T}{\pi} \frac{\Gamma_1(q)}{[\omega^2 - \omega_q^2]^2 + \omega_q^2 \Gamma_1^2(q)}. \quad (5.2.23)$$

Эта функция определяет два пика с шириной

$$\Gamma_1(q) = \gamma_q \sum_q^2 / \omega_q^2 \leq \gamma_q. \quad (5.2.24)$$

При  $\omega \ll \gamma_q$  интенсивность рассеяния в основном определяется вторым слагаемым в знаменателе и при  $\omega \rightarrow 0$  имеет вид

$$S_c(q, \omega) \approx \frac{T}{\pi} \frac{\sum_q^2 \Gamma_c(q)}{\Omega_q^2 \omega_q^2 \Gamma_c^2(q) + \omega^2}, \quad (5.2.25)$$

где ширина центрального пика

$$\Gamma_c(q) = \gamma_q \Omega_q^2 / \omega_q^2. \quad (5.2.26)$$

То есть в режиме медленной релаксации имеется три пика, как изображено на рис. 5.2.3а.

Как видно из рис. 5.2.3а при  $T \rightarrow T_c$  в функции рассеяния должно наблюдаться три пика: два симметричных относительно нуля, и центрированных на частотах мягкой моды  $\pm\Omega_{qc}$ , сдвигающихся к нулю при  $T \rightarrow T_c$ , и центральный пик, центрированный относительно нуля. На рис. 5.2.3б показано температурное поведение интенсивности  $I_0$  и ширины  $\gamma$  центрального пика. На рис. 5.2.3в показано поведение частоты мягкой моды. Видно, что она не обращается в ноль при  $T=T_c$ . Говорят, мягкая мода замораживается.

Заметим, что описанное выше поведение функции рассеяния является типичным для фазовых переходов в критической области.

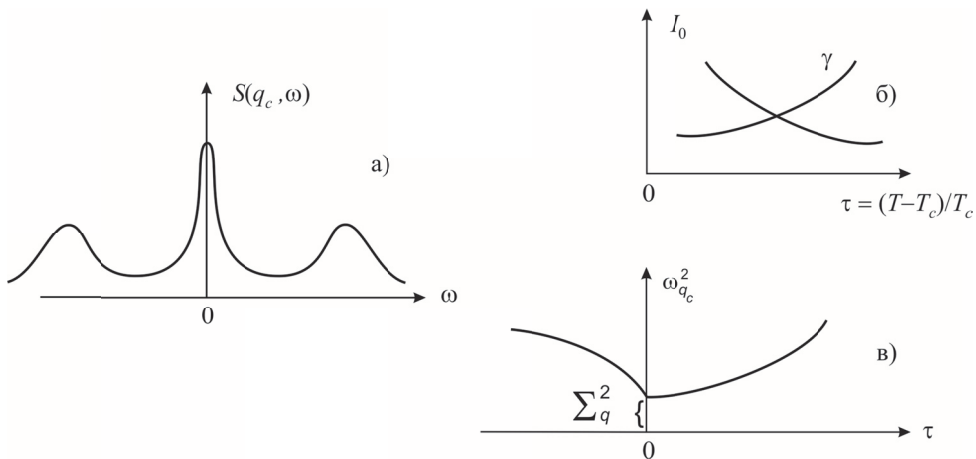


Рис. 5.2.3. Схематическое изображение мягкой моды и центрального пика вблизи  $T_c$ . Пояснения даны в тексте.

### § 5.3. Простые классические жидкости

На фазовой диаграмме жидкость занимает промежуточное положение между твердым телом и газом, для которых имеются простые модели, довольно хорошо соответствующие экспериментальным данным. Для твердых тел – это идеальная кристаллическая решетка, описывающая упорядоченный структурный ландшафт, на котором разыгрывается динамика системы, хорошо представленная квазичастицами. Для газов – это идеальный невзаимодействующий или слабозаимодействующий газ частиц. Трудности теоретического описания жидкостей обусловлены тем, что для них нет подобной модели, хотя интуитивно понятно, и это подтверждается экспериментами, что жидкостям должны быть присущи в той или иной мере черты как твердых тел, так и газов. Наибольший прогресс физики жидкости был достигнут в изучении *простых жидкостей* в

области структурной теории, использующей формализм временных корреляционных функций и понятие радиальной функции распределения частиц  $g(r)$ . Под простыми жидкостями понимают одноатомные жидкости, структурные и динамические свойства которых могут быть поняты на основе парного потенциала взаимодействия. В настоящее время количественное описание структуры жидкости не уступает по надежности методам теории кристаллической структуры.

Исследование атомного движения в жидкости долгое время отставало от изучения структуры жидкости, как по интенсивности, так и по теоретической оснащенности, и начало развиваться с появлением современных экспериментальных методов. Имеются три основные группы экспериментов по изучению динамики атомов жидкости: рассеяние света на флуктуациях плотности, рассеяние рентгеновских лучей и рассеяние медленных нейтронов. Характерный размер флуктуаций, исследуемых при помощи света, порядка длины световой волны и находится, таким образом, в области применимости гидродинамики и ее обобщений. Длина волны рентгеновских  $\gamma$ -квантов порядка межатомного расстояния; поэтому они часто используются для изучения пространственного расположения атомов жидкости. Наиболее полная информация, лежащая в основе современной динамической теории жидкости, получена методами рассеяния нейтронов.

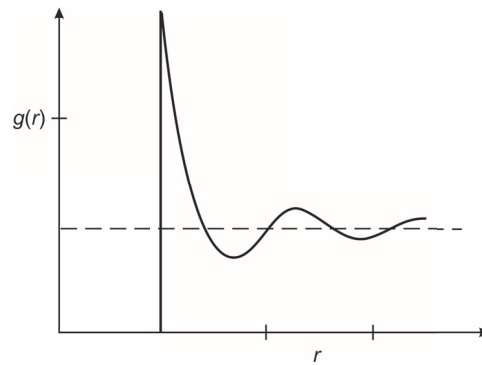
### 5.3.1. Статический структурный фактор

Самая простая структурная модель жидкости – это система невзаимодействующих не проникающих друг в друга атомов (твердых шаров). Эта модель годится для простых однокомпонентных жидкостей, например, легких благородных газов. Она основана на том, что притяжение под действием сил Ван дер Ваальса гораздо слабее сил отталкивания между заполненными электронными оболочками при столкновении. Как показывает опыт, такая модель достаточно хорошо описывает любую жидкость, атомы которой можно считать более или менее сферическими. В частности, это относится и к жидким металлам.

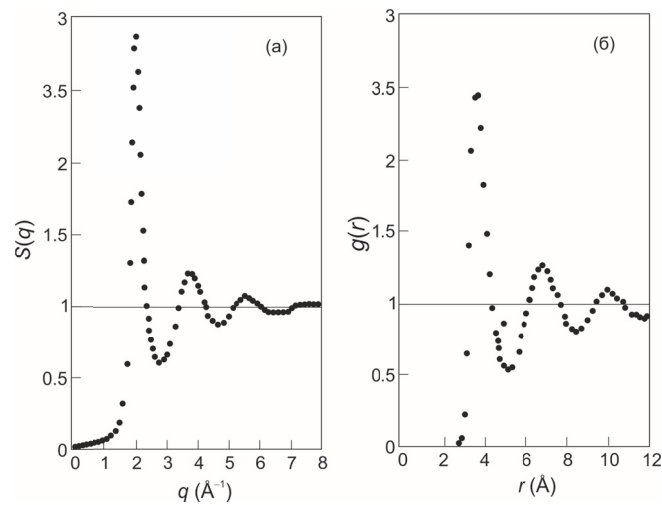
Из твердых шаров можно составить в ящике плотно упакованный кристалл, в котором каждый атом будет иметь двенадцать ближайших соседей. В таком представлении жидкость – это мешок с однородно плотно набитыми шарами без дальнего порядка. Такая система имеет собственный объем, но не имеет собственной формы. Эта модель топологического беспорядка оказалась удивительно удачной при качественной и даже количественной трактовке физических свойств жидкостей и получила имя своего изобретателя – Дж.Бернала.

Вычисление *радиальной функции распределения* для многих одноатомных жидкостей отражает их общее поведение (см. рис. 5.3.1). Хотя это поведение имеет качественный характер, тем не менее оно отражает главные черты

структуры жидкостей: отсутствие дальнего порядка, но наличие ближнего порядка в пределах первой координационной сферы.



**Рис. 5.3.1.** Полученная численными расчетами радиальная функция распределения  $g(r)$  для одноатомных жидкостей.  $r$  – расстояние от центра в единицах диаметра сферы.



**Рис. 5.3.2.** (а) Типичный вид структурного фактора  $S(q)$  для щелочных металлов в жидком состоянии. (б) Схематичный вид парной  $g(r)$  корреляционной функции, вычисленной с использованием  $S(q)$ .

Более точная информация о структуре жидкости может быть получена из измерений статического структурного фактора (4.3.10) в экспериментах по рассеянию нейтронов или рентгеновских лучей. В качестве примера на рис. 5.3.2а показан структурный фактор жидкого натрия, полученный в экспериментах на реакторе ИБР-2. С использованием выражения (4.3.10) можно вычислить статическую парную корреляционную функцию  $g(r)$  (4.3.4), которая описывает распределение частиц относительно некоторой частицы, выбранной в качестве «нулевой». Эта функция и определяет ближний порядок в расположении частиц в жидкости.

Сравнивая рис. 5.3.1 и 5.3.2 видим, что обсуждаемые выше модельные расчеты качественно довольно хорошо согласуются с экспериментом, что подтверждает наличие ближнего порядка в жидкости.

### 5.3.2. Коллективные возбуждения

Как энергия, так и длина волны медленных нейтронов того же порядка, что и соответствующие параметры теплового движения атомов жидкости, поэтому закон рассеяния медленных нейтронов содержит максимальную информацию об атомном движении. Дважды дифференциальное сечение рассеяния нейтронов на системе атомов может быть представлено в виде двух членов, соответствующих когерентной и некогерентной составляющим рассеяния (§ 4.3.):

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} = \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} \right)_{\text{ког.}} + \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} \right)_{\text{н.к.}}. \quad (5.3.1)$$

Каждый из этих членов в борновском приближении можно выразить через функции, зависящие только от параметров образца:

$$\begin{aligned} \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} \right)_{\text{ког.}} &= \frac{\sigma_{\text{ког.}}}{4\pi\hbar} \frac{k}{k_0} S(k, \omega), \\ \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} \right)_{\text{н.к.}} &= \frac{\sigma_{\text{н.к.}}}{4\pi\hbar} \frac{k}{k_0} S_s(k, \omega), \end{aligned} \quad (5.3.2)$$

где  $\sigma_{\text{ког.}}$  и  $\sigma_{\text{н.к.}}$  – сечения когерентного и некогерентного рассеяния,  $k_0$  и  $k$  – волновые вектора падающего и рассеянного нейтронов, а  $S(k, \omega)$  и  $S_s(k, \omega)$  – функции, определяемые свойствами рассеивающей системы. Функция  $S(k, \omega)$  связана фурье-преобразованием с корреляционной функцией  $G(r, t)$ , описывающей корреляцию плотности в двух различных пространственно-временных точках. Вводя термодинамические средние  $\langle \dots \rangle$  от оператора плотности  $\rho(k) = \sum_r e^{-ikr}$  в гейзенберговском представлении, функцию  $S(k, \omega)$  можно представить в виде

$$S(k, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \langle \rho(-k, 0) \rho(k, t) \rangle. \quad (5.3.3)$$

Функция  $S_s(k, \omega)$  является фурье-образом автокорреляционной функции  $G(r, t)$ , описывающей вероятность того, что за время  $t$  атом переместится на вектор  $\vec{r}$ . Поэтому при анализе экспериментальных данных возникает два круга вопросов. Один из них, связанный с некогерентной составляющей рассеяния включает задачи описания одночастичного движения атомов жидкости. Второй, связанный с когерентной составляющей, включает проблемы коллективного движения.

Необходимо с самого начала подчеркнуть условность разделения атомного движения в жидкости на коллективное и одночастичное. В кристалле такое разделение довольно естественно, если под одночастичным движением понимать диффузию выделенного атома, а под коллективным – фононы. В жидкости к введению понятия коллективного движения нужно подходить с большей осторож-

ностью. Поэтому до выяснения механизма высокочастотных возбуждений в жидкости мы ограничимся чисто эмпирическим определением коллективного движения как характерного эффекта, проявляющегося в законе неупругого когерентного рассеяния. Этот эффект состоит в том, что для жидкости при температурах, не слишком далеких от температуры плавления, динамический структурный фактор, рассматриваемый как функция от  $\omega$ , при фиксированном  $k$  имеет максимумы, положение которых близко к положениям фононных пиков для того же образца в кристаллическом состоянии. В дальнейшем, возбуждения жидкости, соответствующие этим максимумам, будем называть квазифонами. Сходство некоторых характеристик жидкости и кристалла было обнаружено задолго до начала экспериментов по рассеянию нейтронов. Так, в 1928 г. Стюарт с помощью рентгенографических методов структурного анализа обнаружил сохранение ближнего порядка в жидкости вблизи температуры кристаллизации. Было установлено, что при плавлении распределение ближайших атомов относительно выделенного меняется незначительно и обладает той же симметрией, что и в кристалле. Для объяснения этого факта Стюарт предложил рассматривать жидкость как совокупность беспорядочно ориентированных кристалликов субмикроскопических размеров.

Впоследствии Френкель предложил теорию, объясняющую широкий круг кинетических явлений в жидкости на основе сближения представлений о жидком и твердом состояниях. В качестве основных характеристик жидкости, ответственных за тепловое движение, процесс плавления, вязко-упругие явления в этой теории фигурируют «время оседлой жизни» атома  $\tau$  в некотором положении равновесия, период колебаний атома  $\tau_0$  относительно этого положения и время  $t$ , в течение которого внешние силы, стремящиеся деформировать жидкость остаются неизменными. Анализируя обширный экспериментальный материал, Френкель показал, что характерной для жидкости ситуацией является случай  $\tau \gg \tau_0$ , что и позволяет применять выводы теории атомного движения в кристалле к жидкому состоянию. Так зародилась концепция *квазикристаллической модели жидкости* и была продемонстрирована ее плодотворность для объяснения макроскопических свойств жидкости.

С появлением нейтронных методов исследования эта концепция оказалась особенно важной для микроскопического истолкования процессов рассеяния нейтронов жидкостями. Это относится, прежде всего, к когерентной составляющей рассеяния по следующей причине. При рассеянии нейтрона с передачей импульса порядка обратного межатомного расстояния (в единицах  $\text{\AA}^{-1}$ ) возбуждается квазифонon с частотой порядка  $10^{13}$  Гц. Характерное время диффузионных процессов порядка  $10^{-12}$  сек. Таким образом, характерное время колебательного движения атома на порядок меньше диффузионного, поэтому пренебрежение диффузией, то есть отождествление жидкости с аморфным



твердым телом при рассмотрении распространения квазифонаона представляется довольно хорошим приближением.

В жидкостях не так уж часто наблюдаются хорошо определенные коллективные моды. Тем не менее, в ряде случаев (например, Rb, Ni) в динамическом структурном факторе  $S(q, \omega)$  наблюдаются пики относительно некоторых  $\omega_q$ , весьма похожие на пики в твердых телах. Поэтому в упрощенном виде для простой классической жидкости можем предположить

$$S(q, \omega) = S(q) \left[ \frac{1}{2} \delta(\omega - \omega_q) + \frac{1}{2} \delta(\omega + \omega_q) \right], \quad (5.3.4)$$

где  $S(q)$  – (статический) структурный фактор

$$S(q) = \int_{-\infty}^{\infty} S(q, \omega) d\omega. \quad (5.3.5)$$

Вспользуемся вторым моментом для динамического структурного фактора:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \omega^2 S(q, \omega) d\omega = q^2 \frac{k_B T}{M}, \quad (5.3.6)$$

где  $M$  – масса атома. Подставляя (5.3.5) в (5.3.6) получаем

$$S(q) \omega_q^2 = q^2 \frac{k_B T}{M} \quad (5.3.7)$$

или

$$\omega_q^2 = q^2 k_B T / S(q) M. \quad (5.3.8)$$

В длинноволновом пределе  $q \rightarrow 0$  воспользуемся соотношением [Аксенов и Тропин, 2020]

$$\lim_{q \rightarrow 0} S(q) = S(0) = \rho_0 k_B T \chi_T = \gamma k_B T / M v_s^2,$$

где  $\gamma$  – отношение теплоемкостей  $c_p/c_v$ ,  $v_s$  – скорость звука. Из (5.3.8) при  $q \rightarrow 0$  получаем

$$\omega_q^2 = \frac{q^2}{\gamma} v_s^2. \quad (5.3.9)$$

Это соотношение неплохо согласуется с опытом при  $\gamma \approx 1$ . Например, для N, K, Rb  $\gamma = 1.12, 1.11, 1.15$ , соответственно. Предел  $q \rightarrow 0$  хорошо соответствует гидродинамическому пределу. Такой подход оказывается весьма продуктивным, когда коллективные возбуждения рассматриваются в так называемом гидродинамическом пределе малых  $\omega$  и  $q$ :  $\omega \ll 2\pi/\tau$ ,  $q \ll 2\pi/a$ , где  $\tau$  – время релаксации импульса и  $a$  – длина порядка межатомного расстояния. Тогда для описания системы можно использовать феноменологические уравнения гидродинамики [Ландау и Лифшиц, 2001, т. 10].

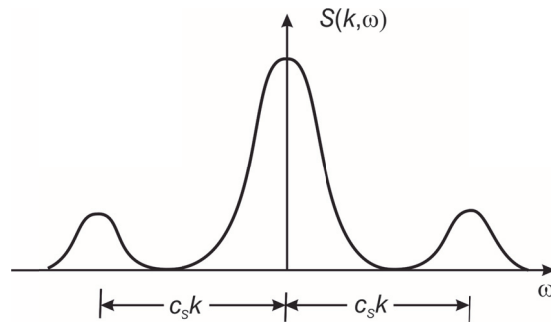
Поскольку в рассматриваемом предельном случае продольные и поперечные моды независимы, отсюда следует, что на кривой  $S(q, \omega)$  будут три пика: центральный (рэлеевский) и два боковых (дублет Мандельштама – Бриллюэна). Первый из них соответствует релаксации температуры; он

центрирован около нулевой частоты  $\omega = 0$ . Вторые два центрированы около частот  $\pm c_s q$ , где  $c_s$  – скорость звука. Эти пики имеют форму, близкую к лоренцевой; про их ширины сказано в подписи к рис. 5.3.3.

Черты спектра, изображенные на рис. 5.3.3, были действительно обнаружены в опытах по рассеянию света. Поскольку для интерпретации этих опытов существенны значения  $q \sim 10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ , условия применимости гидродинамической теории несомненно соблюдаются.

При переходе к бóльшим значениям  $q$  и  $\omega$  гидродинамическое приближение постепенно становится неоправданным; сверх того, для определения функции  $S(q, \omega)$  в этой области лучше обратиться к опытам по рассеянию нейтронов, а не рентгеновских лучей. Однако, экстраполируя на этот случай результаты гидродинамического приближения, следует ожидать быстрого уширения пиков с последующим их слиянием в один широкий центральный пик.

Так обстоит дело в сжиженных благородных газах, например в жидком аргоне или неоне. Опыт показывает, что боковые пики там удается разрешить лишь при малых значениях волнового числа  $q$ .



**Рис. 5.3.3.** Центральный рэлеевский пик и дублет Мандельштама – Бриллюэна (пики около частот  $\omega = \pm c_s q$ ). Ширина пиков дублета определяется величиной затухания возбуждений. Ширина рэлеевского пика при  $\omega = 0$  определяется теплопроводностью.

С другой стороны, в жидком рубидии (металле) все три пика еще видны при волновых числах, лежащих далеко за пределами гидродинамической области.

Заметим, область очень малых переданных импульсов  $q$  (гидродинамический режим) плохо подходит для измерений неупругого рассеяния нейтронов, здесь лучше использовать традиционное бриллюэновское рассеяние света. Поэтому возникает вопрос – в достижимой для нейтронов области:  $0.1 \leq q/q_m \leq 0.5$ , где  $q_m$  – положение узкого дифракционного пика в  $S(q)$ , наблюдаемые возбуждения относятся ли к обычной гидродинамике? Имеющиеся эксперименты в жидкостях в ограниченной  $(q, \omega)$  области и с плохим разрешением дают скорость звука заметно бóльшую, чем измеренную в обычных экспериментах. При этом энергия коллективных возбуждений при малых значениях  $q$ , больше измеряемых в экспериментах по рассеянию света. Все это

пока плохо поддается объяснению, поэтому возникло отдельное направление – *нейтронное бриллюэновское рассеяние*.

Эксперименты в этом направлении сталкиваются с целым рядом сложностей. Первое, сечение рассеяния мало, так как отношение  $k_1/k_0$  мало. Второе, большие скорости звука (порядка 5000 м/с для некоторых легких элементов) в сочетании с малыми значениями  $q$  (порядка  $0.1q_m$ ) создают серьезные кинематические ограничения на геометрию рассеяния, из которых следует необходимость использовать падающие нейтроны с большой энергией и малые углы рассеяния. Кроме этого требуется тщательное измерение фонового рассеяния. Эти технические трудности пока препятствуют широкому применению нейтронного бриллюэновского рассеяния.

Нельзя сказать, чтобы измерения дисперсионных кривых в жидкостях при больших переданных импульсах были легкими. На рис. 5.3.4 изображена дисперсионная зависимость частоты продольных квазифононов  $\varepsilon_L(q)$  от волнового числа для жидкого аргона, вычисленная В.Б.Приезжевым методом двухвременных функций Грина в квазикристаллической модели [Приезжев, 1969; Аксенов и Тропин, 2020]. На график пунктиром нанесены экспериментальные значения частоты продольных возбуждений, определенные методом рассеяния тепловых нейтронов при температуре 85,9°K.

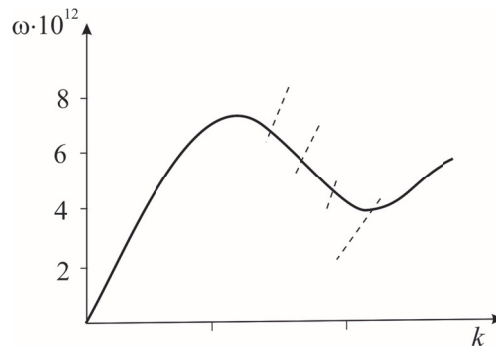


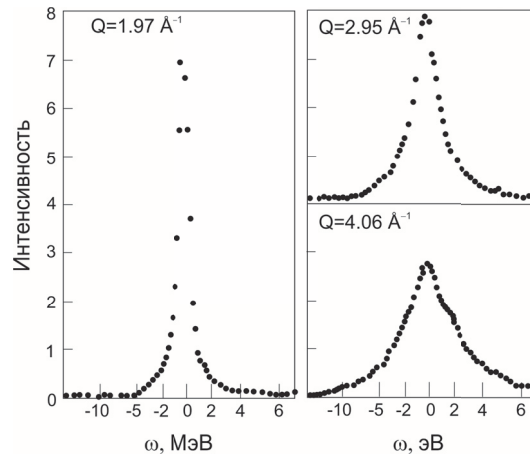
Рис. 5.3.4. Дисперсионная кривая квазифононов в простой классической жидкости.

Как видим, полученные результаты находятся в удовлетворительном согласии с экспериментальными данными об элементарных возбуждениях в жидком аргоне, которые имеются в настоящее время. При больших значениях волнового числа дисперсионная кривая стремится к определенному пределу. Это означает, что в области коротких длин волн возбуждения в жидкости не имеют коллективного характера и описываются моделью независимых осцилляторов.

### 5.3.3. Одночастичный отклик

На рис. 5.3.5 показан энергетический спектр рассеяния нейтронов в жидком аргоне, для нескольких значений вектора рассеяния  $q$ . Процесс рассеяния

является некогерентным, что соответствует выражению (4.2.15) для динамического структурного фактора  $S_{нк}(q, \omega)$ .



**Рис. 5.3.5.** Спектр рассеяния нейтронов от одноатомной жидкости в зависимости от переданной энергии  $\omega$  при различных значениях вектора рассеяния  $Q$ .

Процесс рассеяния на рис. 5.3.5 центрирован относительно упругого ( $\omega = 0$ ) рассеяния и имеет вид лоренцевского пика, ширина которого увеличивается при увеличении модуля вектора рассеяния  $q$ . Рис. 5.3.5 демонстрирует типичную картину некогерентного рассеяния от жидкостей.

Согласно выражению (4.2.15) некогерентная часть функции рассеяния  $S_{нк}(\vec{q}, \omega)$  связана с автокорреляционной функцией отдельной частицы  $G_s(\vec{r}, t)$ . Вид  $S_{нк}(\vec{q}, \omega)$  при больших  $q$  зависит от вида  $G_s(\vec{r}, t)$  при малых  $r$ . При увеличении  $q$  функция  $S_{нк}(\vec{q}, \omega)$  уширяется и распространяется в сторону больших  $\omega$ . Это означает, что функция  $G_s(\vec{r}, t)$ , соответственно, сужается при  $t \rightarrow 0$ , то есть поведение жидкости на коротких временах похоже на поведение свободных атомов – предел идеального газа, в котором справедлива статистика Больцмана.

Режим малых времен рассеяния впервые был изучен Плачеком (Plachek) в 1952 г. и Виком (Wick) в 1954 г. и достаточно подробно описан в монографиях [Турчин, 1963; Lovesey, 1984, vol. 1]. Поэтому здесь мы ограничимся этими ссылками, но вернемся к этому вопросу в следующем параграфе.

В другом предельном случае малых значений  $q$  и  $\omega$  поведение функции  $S_{нк}(\vec{q}, \omega)$  определяется поведением функции  $G_s(\vec{r}, t)$  при больших  $r$  и  $t$ . Поскольку при больших временах атомы испытывают много столкновений, то долговременное поведение соответствует диффузионному движению. Типичные времена для газоподобного поведения  $t \leq 10^{-12}$  сек., для *диффузионного*

движения  $t \leq 10^{-3}$  сек.

Диффузия частиц может быть описана уравнением Фика:

$$\frac{\partial \rho(\vec{r}, t)}{\partial t} = D \nabla^2 \rho(\vec{r}, t), \quad (5.3.10)$$

где  $\rho(\vec{r}, t)$  – плотность атомов,  $D$  – константа диффузии. Используя определение парной корреляционной функции  $G_s(\vec{r}, t)$  (4.2.11) можем заменить  $\rho(\vec{r}, t)$  в уравнении (5.3.10) на  $G_s(\vec{r}, t)$  после соответствующей процедуры усреднения. При изотропной диффузии уравнение (5.3.10) для  $G_s(\vec{r}, t)$  имеет решение:

$$G_s(\vec{r}, t) = (4\pi Dt)^{-3/2} \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right), \quad (5.3.11)$$

Которое нужно дополнить граничными условиями:  $G_s(\vec{r}, 0) = \delta(\vec{r})$  и  $G_s(\vec{r}, \infty) = 0$ . Фурье-преобразование выражения (5.3.11) дает для корреляционной функции выражение

$$Y_s(\vec{q}, t) = \int G_s(\vec{r}, t) e^{i\vec{q}\vec{r}} d\vec{r} = \exp(-q^2 Dt) \quad (5.3.12)$$

и для функции рассеяния

$$S_{\text{нк}}(q, \omega) = \frac{1}{2\pi \hbar} \int Y_s(q, t) \exp(-i\omega t) dt = \frac{1}{\pi \hbar} \frac{Dq^2}{\omega^2 + (Dq^2)^2} \quad (5.3.13)$$

Последнее выражение имеет вид функции Лоренца с максимумом при  $\omega = 0$  – квазиупругое рассеяние. Именно такого вида функция соответствует эксперименту (рис. 5.3.5). Ширина пика на половине высоты (полуширина)  $\Gamma$  напрямую связана с коэффициентом диффузии

$$\Gamma = 2\hbar Dq^2. \quad (5.3.14)$$

Заметим, что соотношение (5.3.14) справедливо при  $q^{-1} \gg a$  – расстояния между соседними атомами жидкости. Этот механизм диффузии (классическая диффузия) перестает действовать при увеличении  $q$  и перестает работать при  $q^{-1} \approx a$ , когда нейтроны уже начинают различать микроскопические детали диффузионного процесса.

В этом случае эксперимент может быть представлен механизмом прыжковой диффузии, в котором атом колеблется относительно некоторого положения равновесия в течение времени  $\tau_0$  (время релаксации), затем он перепрыгивает на другое равновесное положение за время  $\tau_1 \ll \tau_0$ . Для прыжковой диффузии уравнение Фика (5.3.10) может быть переписано в виде:

$$\frac{\partial G_s(\vec{r}, t)}{\partial t} = \frac{1}{n} \sum_l \frac{G_s(\vec{r} + \vec{l}, t) - G_s(\vec{r}, t)}{\tau_0}, \quad (5.3.15)$$

где  $\vec{l}$  – вектор прыжка,  $n$  – число возможных прыжков. В (5.3.15) числитель соответствует колебаниям атомов, знаменатель – релаксации. После преобразования Фурье уравнение (5.3.15) принимает вид

$$\int \frac{\partial G_s(\vec{r}, t)}{\partial t} \exp(iqr) d\vec{r} = \frac{1}{\tau_0 n} \sum_t \left( G_s(\vec{r} + \vec{l}, t) - G_s(\vec{r}, t) \right) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r}. \quad (5.3.16)$$

После интегрирования получаем выражение для корреляционной функции:

$$\frac{\partial Y_s(q, t)}{\partial t} = -f(\vec{q}) Y_s(\vec{q}, t), \quad (5.3.17)$$

где

$$f(\vec{q}) = \frac{1}{n\tau_0} \sum_t \left( 1 - \exp(-i\vec{q}\vec{l}) \right). \quad (5.3.18)$$

Решение дифференциального уравнения (5.3.17) дает корреляционную функцию

$$Y_s(\vec{q}, t) = \exp(-f(\vec{q})t), \quad (5.3.19)$$

которая удовлетворяет граничным условиям

$$G_s(\vec{r}, 0) = \delta(r) \text{ и } Y_s(\vec{q}, 0) = \int \delta(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r} = 1.$$

Преобразование Фурье выражения (5.3.19) даст функцию рассеяния

$$\begin{aligned} S_{\text{нк}}(\vec{q}, \omega) &= \frac{1}{2\pi\hbar} \int Y_s(\vec{q}, t) \exp(-i\omega t) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int \exp(-f(\vec{q})t) \cos \omega t = \\ &= \frac{1}{\pi\hbar} \frac{f(\vec{q})}{\omega^2 + f^2(q)}, \end{aligned} \quad (5.3.20)$$

которая имеет вид функции Лоренца с полушириной

$$\Gamma = 2\hbar f(\vec{q}). \quad (5.3.21)$$

Рассмотрим функцию  $f(q)$ , которая определяется выражением (5.3.18). Для жидкости естественно предположить случайные ориентации вектора  $\vec{l}$ . Его длину зададим функцией распределения  $\alpha(l)$ :

$$\alpha(l) = \exp(-l/l_0). \quad (5.3.22)$$

Используя (5.3.22) для пространственного усреднения функции (5.3.18), получаем:

$$f(q) = \frac{1}{\tau_0} \left( 1 - \frac{1}{(1 + (ql_0)^2)} \right). \quad (5.3.23)$$

Сравнивая (5.3.13) и (5.3.20) получаем

$$f(q) = Dq^2. \quad (5.3.24)$$

Теперь перейдем к пределу  $q \rightarrow 0$  в (5.3.23):

$$\lim_{q \rightarrow 0} f(q) = \frac{2}{\tau_0} (ql_0)^2. \quad (5.3.25)$$

Таким образом, сравнивая (5.3.24) и (5.3.25) получаем выражение для коэффициента диффузии в модели прыжковой диффузии

$$D = \frac{2l_0^2}{\tau_0}. \quad (5.3.26)$$

Введем среднюю длину прыжков

$$\langle l^2 \rangle = \frac{\iiint l^2 \alpha(l) l^2 dld(\cos\theta) d\phi}{\iiint \alpha(l) l^2 dld(\cos\theta) d\phi} = \frac{\int l^4 \exp(-l/l_0) dl}{\int l^2 \exp(-l/l_0) dl} = 12l_0^2. \quad (5.3.27)$$

Комбинируя (5.3.27) и (5.3.26) получаем

$$D = \frac{\langle l^2 \rangle}{6\tau_0}, \quad (5.3.28)$$

что вполне согласуется с теорией классической диффузии, согласно которой, используя (5.3.11), получаем

$$\begin{aligned} \langle r^2 \rangle &= \int r^2 G_s(\vec{r}, t) d\vec{r} = (4\pi Dt)^{-3/2} \iiint r^2 \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right) r^2 dr d(\cos\theta) d\phi = \\ &= (4\pi Dt)^{-3/2} 4\pi \int r^4 \exp\left(-\frac{r^2}{4Dt}\right) dr = 6Dt \end{aligned} \quad (5.3.29)$$

В реальных жидкостях наблюдаются оба механизма классической и прыжковой диффузии.

#### § 5.4. Квантовая бозе-жидкость

Квантовые жидкости занимают особое место в физике конденсированного состояния, что определяется их свойствами фундаментального характера, такими как сверхтекучесть, особенности спектра коллективных возбуждений, спонтанное нарушение симметрии. По существу, эти свойства, точнее физические представления, возникшие при их описании, послужили теоретической основой многих явлений, и не только в физике конденсированного состояния. Например, концепция квазичастиц в квантовой системе, развитая Л.Д. Ландау в его теории сверхтекучести, является базовой в современной теории конденсированного состояния. Понятие о спонтанном нарушении симметрии, введенное Н.Н. Боголюбовым в модели слабонеидеального Бозе-газа, послужило основой теории электрослабого взаимодействия и дальнейшего развития теории элементарных частиц.

К квантовым жидкостям относятся жидкости изотопов гелия: гелия-4 ( ${}^4\text{He}$ ) и гелия-3 ( ${}^3\text{He}$ ), которые не замерзают при сколь угодно низкой температуре вплоть до абсолютного нуля. В области низких температур обе жидкости переходят в сверхтекучее состояние. Однако, если для гелия-4 это вполне достижимые для рассеяния нейтронов температуры ( $T = 2.2\text{K}$  при давлении 2.5 МПа), то температуры меньше 3мК для гелия-3 практически не достижимы,

особенно при огромном сечении поглощения у гелия-3 (см. Дополнение 2). Поэтому для гелия-3 имеются только несколько экспериментов в нормальной фазе. Другое дело – гелий-4. Имеется много экспериментов и теоретических моделей [Glyde, 1994]. Принято считать одним из неоспоримых достижений неупругого рассеяния нейтронов наблюдение кривой дисперсии элементарных возбуждений в сверхтекучей фазе гелия-4 (гелий-4 в сверхтекучей фазе называют гелием II) [Palevsky et al., 1958]. Мы полагаем, что будет весьма поучительным рассмотреть спектр элементарных возбуждений в гелии-4 и его связь с конденсатом Бозе-Эйнштейна, тем более что в этом вопросе нет окончательных решений.

#### 5.4.1. Спектр возбуждений в гелии-4

Картина атомного движения в жидкости, как мы видели в предыдущем параграфе, чрезвычайно сложна даже в случае простых классических жидкостей. Р. Фейнман [Feynman, 1954, Feynman and Cohen, 1956] вычислил спектр элементарных возбуждений жидкого гелия в полумикроскопическом подходе с использованием взятого из эксперимента структурного фактора  $S(q)$ . На рис. 5.4.1 показан результат измерения  $S(q)$  в экспериментах по рассеянию нейтронов. Видно, что вплоть до  $T = 1$  К структурный фактор сохраняет вид, типичный для однокомпонентных жидкостей.

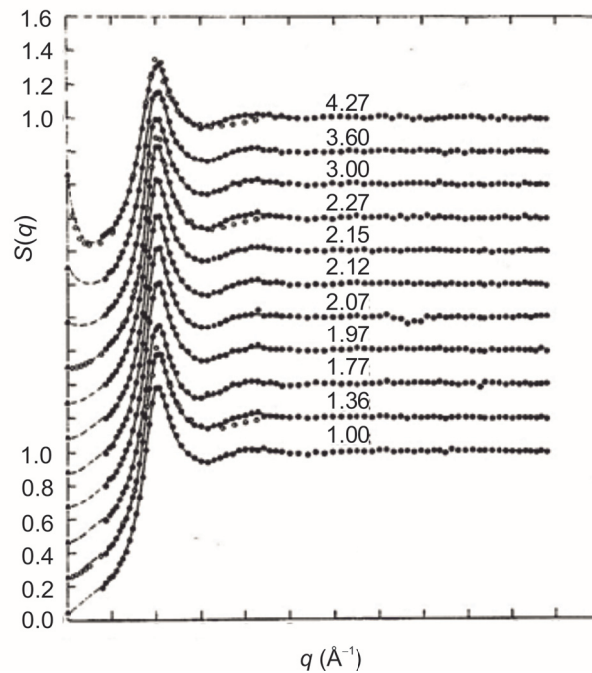


Рис. 5.4.1. Статический структурный фактор жидкого  ${}^4\text{He}$  из рассеяния нейтронов при 11 значениях температуры [Glyde, 1994].



Рассмотрим динамический структурный фактор *идеального бозе-газа*. Поскольку взаимодействие между частицами в нем отсутствует, легко вычислить функцию  $S(q, \omega)$  при  $T = 0$ :

$$S(q, \omega) = \delta(\omega - \hbar q^2 / 2m), \quad (5.4.1)$$

где  $m$  – масса атома  ${}^4\text{He}$ ,  $q$  – квазиимпульс. Соотношение (5.4.1) описывает одночастичные возбуждения, связанные с переходом частицы из состояния с нулевым импульсом в возбужденное состояние с импульсом  $\hbar q$ . Энергия свободной частицы меняется при этом на величину  $\Delta E = \hbar\omega$ , где

$$\hbar\omega = \hbar^2 q^2 / 2m. \quad (5.4.2)$$

Эти результаты нельзя перенести на случай жидкого  ${}^4\text{He}$ , не приняв во внимание энергию взаимодействия между атомами. Действительно, каждая частица жидкости в каждый данный момент взаимодействует с заметной частью всех остальных. Фейнман показал, однако, что в первом приближении есть смысл предположить, что при  $T = 0$  спектр бозевской жидкости сводится к одному очень острому пику. Соответственно можно ожидать, что спектр возбуждений описывается выражением

$$\hbar\omega = \frac{\hbar^2 q^2}{2mS(q)}. \quad (5.4.3)$$

Фейнман по аналогии с малыми колебаниями в кристаллической решетке показал, что статический структурный фактор при малых  $q$  ( $q \rightarrow 0$ ) имеет вид

$$S(q) = \frac{\hbar q}{2mc}, \quad (5.4.4)$$

где  $c$  – скорость звука. Подставляя (5.4.4) в (5.4.3), получаем

$$\omega_q = cq, \quad (5.4.5)$$

что совпадает с вычислениями Н.Н.Боголюбова 1947 года [Боголюбов, 2006, т.8] для модели слабонеидеального бозе-газа, т.е. при малых  $q$  коллективные возбуждения соответствуют колебаниям плотности.

Теория Боголюбова основана на физическом допущении, что в *слабонеидеальном бозе-газе* существует конденсат, подобно тому, как это имеет место в идеальном бозе-газе. Существование *конденсата Бозе-Эйнштейна* приводит к единой волновой функции всей системы, т.е. коллективному эффекту, и поэтому наличие сколь угодно слабого взаимодействия преобразует одночастичные возбуждения в спектр коллективных возбуждений. Для вычисления этого спектра Боголюбов предположил, что при низких температурах бозе-конденсат содержит макроскопически большое, порядка числа Авогадро  $N_A$ , число частиц  $N_0$  вследствие чего матричные элементы операторов рождения и уничтожения частиц в конденсате пропорциональны «большим» числам  $\sim \sqrt{N_0}$ , а основной вклад в динамику системы дают процессы перехода частиц из конденсата в сплошной спектр и возвращения их обратно в конденсат.

Преобразование Боголюбова приводит к спектру коллективных возбуждений по форме, совпадающей с изображением на рис. 5.4.2. Зависимость энергии от импульса возбуждений имеет начальный линейный участок, необходимый для феноменологического объяснения сверхтекучести, и нелинейную часть, которая ставит на нужное место ротон Ландау.

Ландау первым перевел теорию сверхтекучести на язык элементарных возбуждений, соответствующих двум типам движений [Ландау, 1941]. Он постулировал фононы:  $\omega_q = cq$  и отделенные от них энергетической щелью

ротонны:  $\omega_q = \Delta + \frac{\hbar^2 q^2}{2m}$  – вихревого типа возбуждения, где  $c$  – скорость звука,  $m$  –

эффективная масса, и  $\Delta$  – подгоночные параметры для теплоемкости. После появления работы Боголюбова, которую он доложил на общем собрании Отделения физико-математических наук АН СССР 21 октября 1946 г. [Ширков, 2009], Ландау переместил ротон по оси абсцисс [Ландау, 1947] и в дальнейшем рассматривал его как часть единой дисперсионной кривой. Однако термин «ротон» закрепился в литературе. Позже появился еще один не имеющий физического содержания термин – «максон», обозначающий максимум на кривой (рис. 5.4.2). Оба эти названия надо воспринимать лишь как обозначения участков дисперсионной кривой.

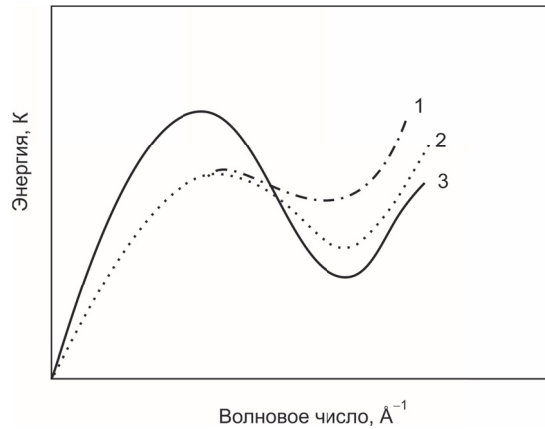
Как видно из рис. 5.4.1, структурный фактор имеет максимум при  $q \approx 1.9 \text{ \AA}^{-1}$ . Соответственно,  $\omega_q$  в (5.4.3) имеет минимум, что тоже качественно совпадает с результатом Боголюбова. Этот минимум обусловлен структурой жидкого гелия, а именно, наличием ближнего порядка в пределах первой координационной сферы, определяемой размером атома He.

При увеличении  $q$  структурный фактор  $S(q) \rightarrow 1$ , и тогда (5.4.3) сводится к выражению (5.4.5), что соответствует свободному движению частиц. Итак, в рамках полумикроскопического подхода Фейнман вычислил дисперсионную кривую возбуждений плотности He II во всем интервале переданного импульса  $p$  (рис. 5.4.2).

Заметим, что Фейнман в своих расчетах опирался на взятый из эксперимента статический структурный фактор и аналогии с колебаниями кристаллической решетки. Действительно, из экспериментов по рассеянию нейтронов следует наличие в жидкостях коллективных возбуждений типа фононов, несмотря на отсутствие кристаллической симметрии. Этот эффект коллективизации колебательного движения был нами подробно изучен в предыдущем параграфе в рамках квазикристаллической модели жидкости, которая правильно отражает качественные особенности коллективных возбуждений типа фононов, в частности, правильно воспроизводит зависимость частоты этих возбуждений от волнового числа.

Обращает на себя внимание сходство дисперсионной кривой для классической жидкости (или, точнее, аморфного твердого тела, моделирующего

жидкость, рис. 5.3.4) с фоновой дисперсионной кривой в жидком гелии. Возникает вопрос: является ли это сходство случайным, или динамика атомов гелия имеет общие черты с динамикой квазикристаллической модели? В теории Ландау объяснение явления сверхтекучести существенно опирается на вид дисперсионной кривой. Почему же в классической жидкости, обладающей сходным фоновым спектром, нет сверхтекучести? Объяснение этому факту содержится в теории Фейнмана, где показано, что бозе-статистика влечет за собой невозможность одночастичных возбуждений с энергией  $\varepsilon(p) \sim p^2/2M$  при  $p \rightarrow 0$ . Если не рассматривать коллективных возбуждений типа квантовых вихрей, фоновый механизм возбуждений является в жидком гелии единственным, что приводит к явлению сверхтекучести. В классической жидкости, напротив, во всем температурном интервале возможны одночастичные возбуждения, которые препятствуют возникновению сверхтекучести. Таким образом, когда речь идет о сходстве возбуждений в классической и квантовой жидкости, имеются в виду только коллективные возбуждения типа фононов. Остается, однако, неясным, можно ли использовать приведенную в § 5.3 схему расчета фоновых частот в случае жидкого гелия. Этот вопрос был исследован В.Б.Приезжевым [Приезжев, 1973; Аксенов и Тропин, 2020], результаты расчетов представлены на рис. 5.4.2.



**Рис. 5.4.2.** Дисперсионные кривые. (1) – теоретическая кривая [Feynman and Cohen, 1956]; (2) – типичная экспериментальная кривая; (3) – теоретическая кривая [Приезжев, 1973].

Успех квазикристаллической модели в описании фоновых частот позволяет сделать выводы о некоторых особенностях дисперсионной кривой в жидком гелии, в частности, о существовании так называемого ротонного минимума. Фононные частоты  $\omega(q)$  в кристалле из-за инвариантности решетки относительно сдвига на вектор  $\vec{a}$  обращаются в ноль при значениях  $q = \frac{2\pi}{a}n$  ( $n = 0, 1, 2$ ). При нарушении трансляционной симметрии в жидкости  $\omega(q)$  уже не обращается в ноль, но при этих значениях  $q$  дисперсионная кривая

имеет минимум. Таким образом, существование минимума функции  $\omega(q)$  обусловлено не какими-либо специфическими особенностями гелия как квантовой системы, а связано лишь с неупорядоченностью системы колеблющихся атомов.

Спектр возбуждений находят в экспериментах по неупругому рассеянию тепловых нейтронов, определяется он функцией рассеяния (динамическим структурным фактором)  $S(q, \omega)$ , интеграл от которого по  $d\omega$  дает структурный фактор. При низких температурах ( $T \leq 1.3$  К) и малых значениях переданного импульса ( $q \leq 0.25 \text{ \AA}^{-1}$ ) наблюдаемый  $S(q, \omega)$ , как функция  $\omega$ , имеет один резко очерченный пик. Положение пика определяет энергию возбуждения  $\omega_q$ . При увеличении  $q$  в  $S(q, \omega)$  дополнительно к узкому пику появляются широкие пики при больших значениях  $\omega$ , как это показано на рис. 5.4.3.

При дальнейшем увеличении  $q$  интенсивность боковой компоненты растет и она все больше разделяется на два пика на фоне широкого пика, которые уже видны при  $q \leq 0.7 \text{ \AA}^{-1}$ .

Наблюдаемую функцию рассеяния  $S(q, \omega)$  обычно представляют в следующем модельном виде

$$S(q, \omega) = S_1(q, \omega) + S_M(q, \omega), \quad (5.4.6)$$

где  $S_1(q, \omega)$  описывает узкий пик, а  $S_M(q, \omega)$  – широкую компоненту, которая отражает рождение двух и более возбуждений или распад одного возбуждения из узкого пика на два или более возбуждений. При  $T \leq 1.3$  К  $S_1(q, \omega)$  является узким, что означает большое время жизни соответствующего возбуждения, и может быть представлен в виде суммы двух  $\delta$ -функций. Соответствующая спектральная функция принимает вид

$$J_1(q, \omega) = S(q) \left[ \delta(\omega - \omega_q) - \delta(\omega + \omega_q) \right], \quad (5.4.7)$$

что по виду совпадает со спектральной функцией кристалла в гармоническом приближении. Первый член в (5.4.7) называют возбуждением Стокса, он соответствует рождению нейтроном возбуждения ( $\omega = \omega_q$ ), второй – возбуждением анти-Стокса с поглощением нейтроном возбуждения ( $\omega = -\omega_q$ ). При  $T = 0$  К возбуждений нет. При этом выполняется условие детального баланса:  $S(q, -\omega) = \exp(-\beta \hbar \omega) \cdot S(q, \omega)$ .

Вторая часть динамического структурного фактора  $S_M(q, \omega)$  имеет вид широкого пика с дополнительной структурой «пичков» на широком основании и высокочастотный хвост. Детальный анализ многих экспериментальных данных убедительно показывает, что в  $S_M(q, \omega)$  нет второй относительно  $S_1(q, \omega)$  ветви возбуждений. В  $S_M(q, \omega)$  содержатся пары, многочастичные возбуждения, продукты распада квазичастиц. Высокочастотный хвост отражает одночастичный и парный отклики.  $S_M(q, \omega)$  представляет собой смесь функций отклика зависящих от  $q$ .

Интенсивность одночастичной компоненты определяется выражением

$$S_I(q) = \int d\omega S_I(q, \omega) \quad (5.4.8)$$

$S_I(q)$  равна  $S(q)$  в (5.4.6) при низких  $T$ , но она превышает заметно  $S(q)$  вблизи  $T_\lambda$ , где  $J_1(q, \omega)$  уширяется. Интенсивность многочастичной компоненты  $S_M(q, \omega)$  растет примерно линейно вплоть до  $q = 1.5 \text{ \AA}^{-1}$ , а затем резко возрастает. При этом интенсивность одночастичной компоненты резко падает и совсем исчезает при  $q \geq 3.5 \text{ \AA}^{-1}$ .

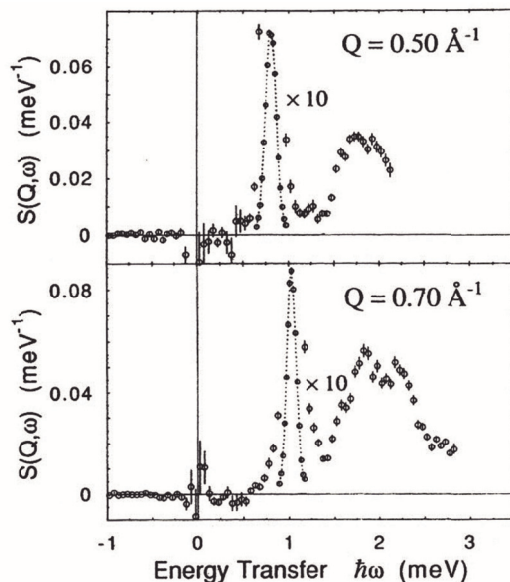


Рис. 5.4.3. Динамический структурный фактор  $S(q, \omega)$  жидкого гелия-4 из экспериментов по неупругому рассеянию нейтронов при  $T = 1.3 \text{ K}$  [Glyde, 1994].

Анализ многих экспериментальных данных дает дисперсионную кривую, показанную на рис. 5.4.2. Видим, что в длинноволновом пределе поведение элементарных возбуждений в жидком гелии такое же как в кристалле. На рис. 5.4.4 приведен спектр возбуждений простейшей модели кристалла – одноатомной линейной цепочки.

На рис. 5.4.4 периодическое поведение частоты  $\omega$  обусловлено трансляционной симметрией и следствием его – дальним порядком. Точка  $\frac{\pi}{a}$  соответствует границе первой зоны Бриллюэна. Нарушение дальнего порядка приведет к тому, что  $\omega(q) \neq 0$  в точке  $q = 2\pi/a$ . Такое сравнение носит сугубо качественный характер. Кроме этого важно иметь в виду, что речь идет об однофононных возбуждениях и в предположении слабости или отсутствия взаимодействия между фононами. Такое описание справедливо в пределе очень низких температур, что, впрочем, и представляет интерес для изучения He II.

Таким образом, в твердых телах благодаря трансляционной симметрии фононы могут существовать при любых  $q$ . Однако однофононное возбуждение в

твердом гелии при  $q \geq 3.5 \text{ \AA}^{-1}$  не наблюдается из-за зануления вклада однофононной компоненты  $S_1(q, \omega)$  в  $S(q, \omega)$ . Этот вклад подавляется фактором Дебая-Валлера из-за большой амплитуды колебаний атомов (нулевые колебания).

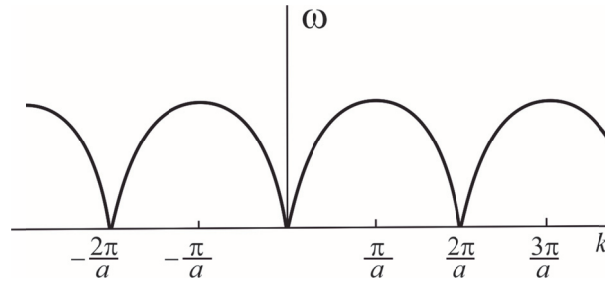


Рис. 5.4.4. Спектр возбуждений одноатомной линейной цепочки с постоянной решетки  $a$ .

При повышении температуры  $S_1(q, \omega)$  уширяется. Соответствующая одночастичная спектральная функция имеет вид

$$J_1(q, \omega) = 2S(q) \left[ \frac{\Gamma_q}{(\omega - \omega_q)^2 + \Gamma_q^2} - \frac{\Gamma_q}{(\omega + \omega_q)^2 + \Gamma_q^2} \right]. \quad (5.4.9)$$

Функция Лоренца (5.4.9) хорошо описывает экспериментальные данные тремя параметрами  $\omega_q(T)$ ,  $\Gamma_q(T)$  и  $S(q, T)$ .  $\omega_q$  и  $\Gamma_q$  соответствуют энергии возбуждения и обратному времени жизни  $\tau_q = \Gamma_q^{-1}$ , соответственно.

Выражение (5.4.9) является простым обобщением  $\delta$ -функции с зависящими от температуры параметрами  $\omega_q(T)$  и  $\Gamma_q(T)$ . Это обобщение получается в результате вычисления функции Грина. Единственное ограничение – это, чтобы  $\Gamma_q$  не была слишком велика.

Было предпринято много попыток улучшения моделей и применения изошренных методов вычисления динамического структурного фактора  $S(q, \omega)$  в гелии II. Отметим работу [Götze and Lücke, 1976], в которой был проведен наиболее последовательный расчет динамической восприимчивости и функции рассеяния с использованием метода проекционных операторов Мори и приближения взаимодействующих мод. Детальный анализ теоретических и экспериментальных работ проведен в монографии [Glyde, 1994]. Отметим широкий круг исследований, проведенный совместной экспериментальной группой из Физико-энергетического института им. А.И.Лейпунского (г. Обнинск, Калужской обл.) и ЛНФ ОИЯИ на реакторах ИБР-30 и ИБР-2 [Пучков и др., 1990; Козлов, 1996]. При всем объеме выполненной теоретической и экспериментальной работы надо признать, что остается еще много вопросов к интерпретации данных при переданных импульсах в «максон-ротонной» области. Главная проблема состоит в отсутствии микроскопической теории жидкостей и особенно квантовой жидкости, где особенно велики квантовые флуктуации.

Поэтому от молекулярной теории на данном этапе можно желать только принципиального, качественного объяснения, основанного на упрощенной модели.

Такое объяснение теория дает. А именно, она объясняет наличие бозевского (фононного) типа коллективных возбуждений. Именно эти два обстоятельства позволяют объяснить сверхтекучесть, и они нашли свое подтверждение в экспериментах по рассеянию нейтронов.

Остается еще один фундаментальный вопрос – происходит ли в гелии II конденсация Бозе-Эйнштейна и, если да, то связана ли со сверхтекучестью. Этот вопрос мы рассмотрим в следующем разделе.

#### 5.4.2. Глубоко неупругое рассеяние в жидком гелии-4

Как было отмечено в §5.3.3 при больших переданных импульсах (в пределе  $q \rightarrow \infty$ ) или, что то же самое, при большой энергии падающих нейтронов или при малых временах рассеяния ( $t_S \rightarrow 0$ ) поведение жидкости похоже на поведение свободных атомов – предел идеального газа. Это обстоятельство наводит на мысль о конденсации Бозе-Эйнштейна, которая была привлечена для объяснения сверхтекучести в гелии-4 Ф.Лондоном и Л.Тиссой в 1938 г. вскоре после открытия П.Л.Капицы. Однако в идеальном газе сверхтекучесть появиться не может из-за одночастичных возбуждений. В модели Боголюбова слабо неидеального бозе-газа (см. предыдущий раздел) существует конденсат Бозе-Эйнштейна (конденсат) и коллективные возбуждения бозевского типа. Коллективные возбуждения, обеспечивающие сверхтекучесть, мы рассмотрели в предыдущем разделе, теперь рассмотрим результаты исследований конденсата с помощью рассеяния нейтронов.

Начало таким исследованиям было положено в работе [Hohenberg and Platzman, 1966], в которой было предложено использовать эпитепловые нейтроны для рассеяния с большой ( $\omega \gg 1$  eV) энергией передачи. Такое рассеяние называют *глубоко неупругим рассеянием*, а также *нейтронным комптоновским рассеянием* или *электрон-вольтовой спектроскопией*. Предел больших  $q$  и  $\omega$  в функции рассеяния  $S(q, \omega)$  дает прямую информацию о движении атомов гелия на коротких расстояниях и на малых временах. При большой энергии падающих нейтронов их длина волны мала по сравнению с межатомным расстоянием. В результате нейтрон взаимодействует только с отдельным атомом и, следовательно, интенсивность рассеяния хорошо аппроксимируется некогерентной функцией рассеяния. Некогерентный предел в жидком гелии достигается при  $q > 10^{-1}$  Å. Импульс передачи настолько велик, что в процессе рассеяния ядра мишени ведут себя как почти свободные частицы, они почти не чувствуют взаимодействия с окружающими их атомами. После столкновения участники процесса движутся как свободные частицы, изменением импульса ядра-рассеивателя за счет взаимодействия с окружением в течение времени рассеяния  $t_S$  пренебрегается. Рассеяние в основном зависит от функции

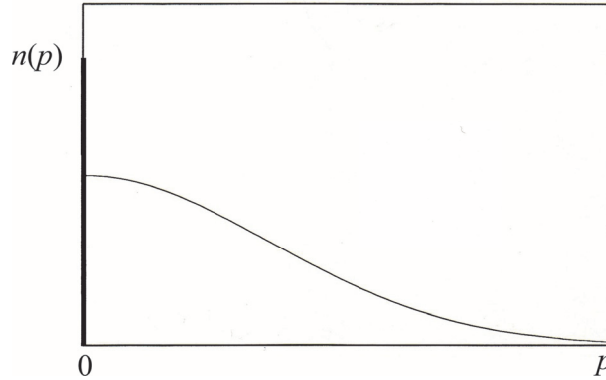
распределения импульса ядра. Это приближение называют *импульсным приближением* или *приближением малых времен рассеяния* (см. § 4.3) [Турчин, 1963; Glyde, 1994]. Обычно предполагается, что волновая функция ядра в конечном состоянии есть плоская волна  $\psi_f(\vec{r}) = \exp(-i\vec{k}_f \cdot \vec{r})$  с волновым вектором  $\vec{k}_f$ . Начальное состояние мишени предполагается в виде коллектива свободных частиц с импульсом  $\vec{p} = \hbar(\vec{k}_f - \vec{q})$ . Функция распределения импульсов  $n(\vec{p})$  есть преобразование Фурье от волновой функции ядра. Функция рассеяния в импульсном приближении имеет вид:

$$\begin{aligned} S_{\text{ип}}(\vec{q}, \omega) &= \sum_f \left| \int d^3\vec{r} \psi_i^*(\vec{r}) \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{r}) \psi_f(\vec{r}) \right|^2 \delta(\omega - E_1 + E_0) = \\ &= \sum_f n(\vec{k}_f - \vec{q}) \delta\left(\omega - \frac{\hbar^2 k_f^2}{2M} + E_0\right) = \int d^3\vec{p} n(\vec{p}) \delta\left(\omega - \frac{\hbar^2 q^2}{2M} - \frac{\hbar^2 \vec{q} \cdot \vec{p}}{M}\right). \end{aligned} \quad (5.4.10)$$

где  $M$  – масса ядра-рассеивателя (атома гелия).

Если в жидком гелии имеется конденсат, то распределение частиц по импульсам имеет следующий вид:

$$n(p) = n_0 \delta(0) + n_{p \neq 0}(p). \quad (5.4.11)$$



**Рис. 5.4.5.** Распределение атомов по импульсам для жидкого гелия при температурах  $T < T_\lambda$ ,  $T_\lambda$  – температура перехода в сверхтекучее состояние ( $\lambda$  – точка).

Первый член соответствует вкладу конденсата в распределение частиц по импульсам, а второй – вкладу надконденсатных атомов. Конкретный вид зависимости  $n_{p \neq 0}(\vec{p})$  для жидкого гелия при произвольной температуре точно не известен, однако, качественный характер  $n(\vec{p})$  имеет вид, изображенный на рис. 5.4.5.

Выделим в (5.4.10) «конденсатную» часть при  $p = 0$ :



$$S_{\text{ин}}(\vec{q}, \omega) = n_0 \delta\left(\omega - \frac{\hbar^2 q^2}{2M}\right) + \frac{M}{4\pi\rho\hbar q} \int_{p_m}^{\infty} \vec{p} n_{p \neq 0} d\vec{p}, \quad (5.4.12)$$

где  $\rho$  – плотность гелия и

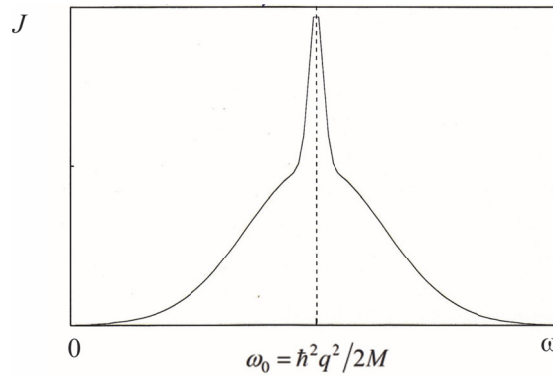
$$p_m = \left| \frac{\omega - \hbar^2 q^2 / 2M}{\hbar q / M} \right|. \quad (5.4.13)$$

Импульсное приближение будет выполняться тем лучше, чем больше  $q$  (меньше время столкновения  $t_S$ ). Строго говоря, оно справедливо в пределе  $q \rightarrow \infty$  ( $t_S \rightarrow 0$ ). В эксперименте это, конечно, не так. При конечной величине  $q$  точные кинематические соотношения, на основе которых получено выражение (5.4.10), нарушаются, так как исключить взаимодействие атомов в мишени нельзя и энергия и импульс нейтрона будут передаваться двум или нескольким взаимодействующим атомам гелия. Это обстоятельство учитывается введением так называемой поправки конечного состояния  $R(q, \omega)$ . Для анализа эксперимента используется функция рассеяния в виде

$$S(\vec{q}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' S_{\text{ин}}(\vec{q}, \omega') R(\vec{q}, \omega - \omega').$$

Функция  $R(q, \omega)$  играет роль функции разрешения при уширении импульсного приближения за счет учета эффектов взаимодействия. При учете искажений, вносимых эффектами конечного состояния, принципиальная трудность состоит в том, что надежный расчет этих эффектов, по существу, требует построения точной микроскопической теории жидкого гелия. Но как раз решению этой задачи и должны в большой мере способствовать экспериментальные определения зависимости  $n_0(T)$ . Лишь в самые последние годы достигнут прогресс в расчете эффектов конечного состояния при глубоко неупругом рассеянии нейтронов гелием.

На рис. 5.4.6 показан в общем виде (схематично) предполагаемый спектр рассеяния.



**Рис. 5.4.6.** Предполагаемый реальный спектр неупругого рассеяния нейтронов жидким гелием при температурах  $T < T_\lambda$  и больших передачах импульса  $q$ .

В импульсном приближении центральный пик на рис. 5.4.6 имеет вид  $\delta$ -функции согласно (5.4.12).

Мы привели начальную схему определения плотности конденсата исключительно с целью показать качественную картину. При экспериментальных исследованиях, а их ввиду фундаментальности проблемы было выполнено огромное множество, схемы расчетов при обработке данных по сложности далеко выходят за формат данной книги. Ситуация здесь даже сложнее, чем при исследованиях коллективных возбуждений (§ 5.4.1), где есть базовая дисперсионная кривая, полученная в микроскопической теории Боголюбова и в полумикроскопической теории Фейнмана. Особенно важна последняя, поскольку она опирается на надежно установленный в эксперименте структурный фактор  $S(q)$ .

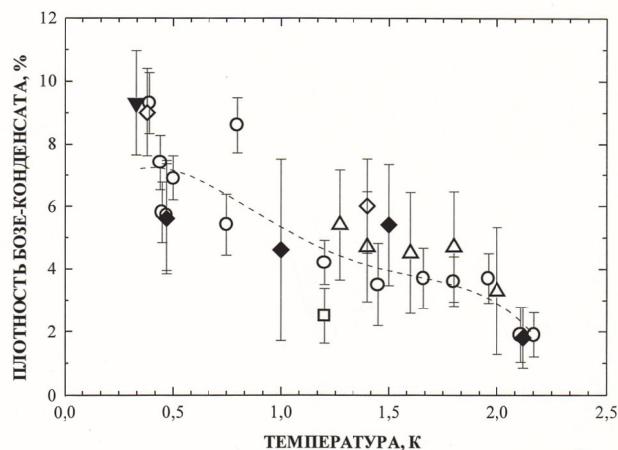
Большой вклад в исследования конденсации Бозе-Эйнштейна в гелии-4 внесла группа физиков из ФЭИ им. А.И.Лейпунского совместно с физиками ОИЯИ и Харьковского физико-технического института.

Экспериментальные исследования жидкого гелия на импульсном реакторе ИБР-30 в Дубне начались в 1968 году [Козлов и др., 1973]. Эксперименты были продолжены на реакторе ИБР-2, после пуска спектрометра ДИН-2ПР. Во всех этих работах величина переданного импульса составляла около  $14 \text{ \AA}^{-1}$ . Особое внимание было обращено на получение максимально точной формы спектров для обеспечения высокой статистической точности определений  $n_0$ . При анализе спектров рассеяния нейтронов был применен вариант феноменологического метода, разработанный теоретиками ОИЯИ Александровым и др. [Александров и др., 1975].

Экспериментальные результаты, полученные на спектрометрах ДИН-1М и ДИН-2ПР [Благовещенский и др., 1983; Богоявленский и др., 1990; Докукин и др., 1978] представляют собой наиболее полную систему данных  $n_0$  в широком интервале температур 4,2 – 0,4 К. Исходя из этих данных, можно попытаться проследить температурную зависимость  $n_0(T)$ . Как видно из рис. 5.4.7, плотность конденсата быстро возрастает от величины, близкой к нулю, при  $T = 2,17 \text{ К}$  до 4 – 5% при  $T \sim 2 \text{ К}$ , затем она остается примерно постоянной до  $T \sim 1 \text{ К}$ . Ниже этой температуры наблюдается тенденция к заметному возрастанию  $n_0$  до ~9% при  $T \sim 0,4 \text{ К}$ . Такой зависимости  $n_0(T)$  не противоречат результаты и других авторов, приведенные на рис. 5.4.7. Конечно, точность определений  $n_0$  не позволяет найти аналитическую зависимость  $n_0(T)$ , а также осуществить надежную экстраполяцию  $n_0(T)$  к  $T = 0$ . Для этого необходимы дальнейшие экспериментальные исследования.

Изучение температурной зависимости плотности конденсата различными методами дали качественно сходные результаты. Однако и до настоящего времени имеет место расхождение в оценках абсолютного значения плотности бозе-конденсата, получаемых различными методами. Поэтому для теории в настоящее время температурная зависимость плотности конденсата в жидком

гелии – вопрос в достаточной степени открытый. Исключение составляют узкие температурные интервалы  $T \rightarrow 0$  и  $T \rightarrow T_\lambda$ . Речь идет фактически об асимптотическом поведении зависимости в окрестностях точек, в которых ее экспериментальная проверка пока невозможна.



**Рис. 5.4.7.** Экспериментальные значения плотности конденсата Бозе-Эйнштейна  $n_0(T)$ , полученные методом неупругого рассеяния нейтронов.  $\circ$  – данные, полученные на спектрометре ДИН-1М;  $\diamond$  – данные, полученные на спектрометре ДИН-2ПР;  $\triangle$ ,  $\square$ ,  $\blacktriangledown$ ,  $\blacklozenge$  – другие работы [Glyde, 1994]. Пунктирная линия – ориентировочный ход зависимости  $n_0(T)$ .

Кроме измерения температурной зависимости несомненный интерес представляет изучение зависимости количества конденсата от плотности жидкости [Благовещенский и др., 1983]. Повышение давления (или плотности) в жидком гелии приводит к уменьшению плотности сверхтекучей компоненты и сдвигу  $\lambda$ -точки в область более низких температур. При давлении 25,5 бар температура  $\lambda$ -перехода опускается до  $T = 1,846$  К (при этом плотность  $\rho = 0,1769$  г/см<sup>3</sup>).

Было показано, что при давлении  $\sim 30$  бар и  $T = 1,7$  К, т.е. в условиях, когда плотность сверхтекучей компоненты стремится к нулю, количество бозе-конденсата также стремится к нулю. Это одно из немногих экспериментальных подтверждений связи явлений конденсации и сверхтекучести. Другим подтверждением можно считать совпадение температуры конденсации с температурой перехода жидкого гелия в сверхтекучее состояние.

Экспериментальные данные, полученные методом неупругого рассеяния нейтронов в разных лабораториях, свидетельствуют о наличии конденсата Бозе-Эйнштейна в сверхтекучем гелии-4. Выше  $\lambda$ -точки конденсат в пределах точности определения не обнаружен. Плотность конденсата становится отличной от нуля ниже  $T_\lambda$  и возрастает с понижением температуры. Количественные расхождения результатов, касающихся температурной зависимости плотности конденсата,

полученных различными авторами, в ряде случаев превышают приводимые авторами значения ошибок эксперимента. Однако, по нашему мнению, они главным образом связаны с различием методов обработки экспериментальных спектров рассеяния нейтронов. В рамках одного и того же метода эти расхождения существенно меньше и, с учетом экспериментальных ошибок, вполне согласуются между собой.

### 5.4.3. Параметр порядка

В общей теории фазовых переходов второго рода изменение состояния системы описывается поведением параметра порядка, характеризующего ее симметрию. Для  $\lambda$ -перехода в бозе-жидкости роль такого параметра играет волновая функция конденсата  $\Psi_0(r)$ , описывающая появление «дальнего» порядка в жидкости. Согласно концепции конденсации Бозе-Эйнштейна в сверхтекучей жидкости, в отличие от несверхтекучей, конечная доля частиц (реальных!) имеет равный нулю импульс. Эти частицы образуют конденсат в импульсном пространстве. В идеальном газе все его частицы переходят в конденсат, в почти идеальном газе – почти все частицы, в бозе-жидкости с сильным взаимодействием между частицами в конденсате при  $T = 0$  будет находиться только какая-то доля всех частиц.

При определенных предположениях, если число частиц в состоянии с  $p = 0$  достаточно велико, то соответствующую компоненту оператора бозонного поля  $\Psi(\vec{r})$  можно приблизительно заменить на ее среднее значение  $\Psi_0$ . Тогда  $\Psi(\vec{r})$  можно представить в виде

$$\Psi(\vec{r}) = \Psi_0 + \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{p \neq 0} e^{i\vec{p}\vec{r}} a_p, \quad (5.4.14)$$

где  $a_p$  – оператор уничтожения частиц.  $\Psi_0$  играет роль параметра порядка, он характеризуется как величиной, так и фазой:

$$\Psi_0 = \sqrt{n_0} e^{i\varphi}, \quad (5.4.15)$$

где  $n_0$  – плотность частиц в конденсате. Плотность частиц в конденсате максимальна при  $T = 0$ , при повышении температуры она падает по закону

$$\sqrt{n_0} \approx (T_\lambda - T)^\beta. \quad (5.4.16)$$

Экспериментальное определение  $\Psi_0$  довольно сложная задача, которая решалась на протяжении многих лет с помощью рассеяния нейтронов. В настоящее время нет полного согласия в значении  $n_0$ , оно колеблется от 14% до 8%. Однако факт наличия конденсата и его температурной зависимости вида (5.4.16) считается установленным.

Подчеркнем, что плотность конденсата никоим образом нельзя отождествлять с плотностью сверхтекучей компоненты. Реального разделения на нормальную и сверхтекучую составляющие не существует, а конденсация

происходит не в реальном пространстве, а в импульсном и ее причиной является свойство симметрии волновой функции, а не какие-либо межчастичные взаимодействия.

Существование конденсата приводит к качественному отличию в свойствах матрицы плотности частиц бозе-жидкости по сравнению с матрицей плотности в обычной жидкости. В произвольном состоянии однородной бозе-жидкости матрица плотности определяется выражением

$$N\rho(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = n_0 + N\rho'(\vec{r}_1, \vec{r}_2). \quad (5.4.17)$$

«Надконденсатная» матрица плотности  $\rho'$  стремится к нулю при  $|\vec{r}_1 - \vec{r}_2| \rightarrow \infty$ , так что

$$\lim_{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2| \rightarrow \infty} \rho(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = n_0/N. \quad (5.4.18)$$

тогда как в обычных жидкостях всегда  $\rho \rightarrow 0$  при  $|\vec{r}_1 - \vec{r}_2| \rightarrow \infty$ . Таким образом, выражение (5.4.18) отражает «дальний» порядок в состоянии сверхтекучести.

## § 5.5. Молекулярные твердые тела

### 5.5.1. Спектроскопия малых переданных энергий

До сих пор в этой главе мы рассматривали идеальные кристаллы и простые жидкости, которые позволяют создать базовые модели структуры и динамики конденсированного вещества. Эти упрощенные модели с помощью формализма временных корреляционных функций позволяют перейти к наблюдаемым в эксперименте величинам. Но и здесь мы не можем в полной мере воспользоваться данными эксперимента, которые включают в себя больше информации, нежели было заложено в модели. Поэтому полезно иметь, фигурально выражаясь, реперные точки, роль которых играют асимптотики функций рассеяния. Такими естественными асимптотиками являются режимы рассеяния на малых и больших временах столкновения.

При малом времени рассеяния и малом расстоянии от ядра-рассеивателя общее влияние межатомного взаимодействия сводится к возникновению быстрых колебаний, которые могут быть коррелированы (или нет) с соседними атомами. Неупругое рассеяние нейтронов дает информацию о частотах этих колебаний и, если движение носит коллективный характер, то и о коррелированных смещениях атомов. В результате можно воспроизвести межатомный потенциал. В предельном случае очень малых времен и расстояний (при большом переданном импульсе и большой энергии падающего нейтрона – глубоко неупругое рассеяние) мы получим распределение импульса и среднюю кинетическую энергию отдельного атома.

Противоположный предел – поведение на больших временах и на больших расстояниях, когда атом приходит в конечное состояние, испытывая многократные воздействия окружения, а также при возможности стохастические

перемещения. В этом случае квазиупругое рассеяние нейтронов может дать количественную информацию о диффузии и активационных процессах. В обсуждаемом пределе может быть большое разнообразие как отдельных так и смешанных колебательных, вращательных и диффузионных движений, которые можно исследовать с помощью рассеяния нейтронов.

Все, что мы здесь перечислили, представляет интерес для изучения различных функциональных материалов, поскольку микроскопические движения атомов и молекул лежат в основе распространения звука и тепла, атомной и молекулярной диффузии, ионной проводимости, каталитической активности и других явлений. Особый интерес в последнее время вызывает возможность изучать макромолекулярные движения и возбуждения в системах, содержащих в большом количестве водород. В виду особых рассеивающих свойств водорода нейтроны способны выделять элементы структуры и динамику в большом множестве водородсодержащих материалов, имеющих широкие практические применения. В первую очередь это относится к органическим соединениям.

В молекулярных твердых телах и жидкостях, по сравнению с простыми кристаллами и жидкостями, рассмотрение динамики усложняется, поскольку добавляются новые степени свободы в виде вращательных движений, а также возможного смешивания вращательных и трансляционных движений. В результате возможно наличие двух типов порядка (беспорядка): трансляционного и ориентационного. Предельные случаи – это пластические кристаллы, которые полностью лишены ориентационного порядка и жидкие кристаллы, у которых отсутствует трансляционный порядок. Обозначим положение атома в молекуле индексом  $i = 1, 2, \dots, n$  с координатой

$$\vec{r}_i(t) = \vec{R}(t) + \vec{d}_i(t) + \vec{u}_i(t). \quad (5.5.1)$$

где  $\vec{R}$  – положение центра масс молекулы,  $\{\vec{d}_i\}$  – совокупность векторов положений атомов внутри молекулы в равновесном (закрепленном) состоянии,  $\vec{u}_i$  – вектор смещения атома относительно  $\vec{d}_i$ . Корреляции ориентаций молекул обусловлены зависящим от угла взаимодействием между ними.

Не имея серьезного обоснования, мы все таки используем общепринятое расщепление трех возможных типов движения: трансляционного, вращательного и колебательного, что дает возможность факторизации полной промежуточной функции рассеяния:

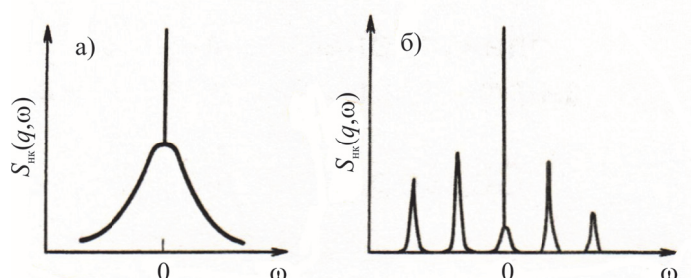
$$I_s(\vec{q}, t) = I_s^r(\vec{q}, t) I_s^{rot}(\vec{q}, t) I_s^{vib}(\vec{q}, t). \quad (5.5.2)$$

Вследствие этого функция рассеяния может быть представлена в виде свертки соответствующих функций рассеяния: трансляционной, вращательной и колебательной:

$$S_s(\vec{q}, t) = S_s^r(\vec{q}, t) \otimes S_s^{rot}(\vec{q}, t) \otimes S_s^{vib}(\vec{q}, t). \quad (5.5.3)$$

Применение расщепления (5.5.2) в общем случае может привести к неверной интерпретации экспериментальных данных. Поэтому каждый конкретный случай требует отдельного рассмотрения. При этом надо учитывать, что доминирование некогерентного рассеяния на водороде диктует преимущественный учет одночастичных вкладов при рассмотрении трансляционных и колебательных движений. В реальных системах все или большинство атомов водорода или протонов находятся в составе молекулярных структурных единиц кристалла.

Особенность указанных типов движения, вращательного движения молекул и диффузии, состоит в том, что они при рассеянии нейтронов приводят к малым переданным энергиям, по сравнению, например, с температурой Дебая в кристаллической решетке. То есть в этих случаях  $\hbar\omega = 10^{-6} - 10^{-3}$  эВ [Шпрингер, 1980]. Общий вид спектра некогерентного рассеяния нейтронов на протоне в молекуле, которая находится в связанном состоянии в твердом теле и может случайным образом поворачиваться вокруг своего положения равновесия, показан на рис. 5.5.1. Молекула совершает случайные (а) или квантовые вращения (б).



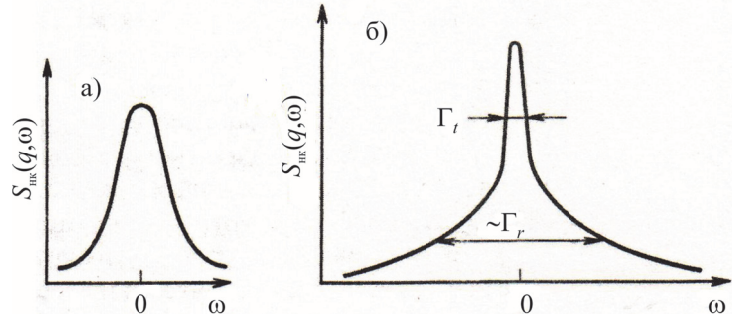
**Рис. 5.5.1.** Функция некогерентного рассеяния (качественная картина) на протоне в молекуле твердого тела; (а) – случайные вращения, (б) – квантовые вращения.

Как видно, в обоих случаях имеется линия упругого рассеяния при  $\hbar\omega = 0$ , которая в реальности имеет определенную ширину, обусловленную разрешением спектрометра. Кроме этого, имеется квазиупругое рассеяние с центром при  $\hbar\omega = 0$  и шириной, обратно пропорциональной характерному времени вращения. Если имеются периодические, почти свободные вращения, или туннельные переходы, то появляются боковые пики (рис.5.5.1б). Боковые пики имеют ширину, определяемую временем жизни квантового состояния, а центральная линия всегда имеет нулевую ширину (ширину функции разрешения), независимо от характера движения молекулы.

Картина будет другой, когда молекула или протон испытывают трансляционную диффузию, как показано на рис. 5.5.2.

В случае диффузии дельта-функции не будет, ширина центрального диффузионного пика определяется коэффициентом самодиффузии и характерным временем диффузионного шага (рис. 5.5.2а). Когда имеется и трансляционное и

вращательное движения, задача по их разделению представляет собой определенную сложность. На рис. 5.5.2б показан случай, когда трансляционная (диффузионная) и вращательная компоненты квазиупругого спектра могут быть разделены: верхняя узкая часть спектра соответствует диффузии, нижняя широкая – вращению.



**Рис. 5.5.2.** Функция некогерентного рассеяния нейтронов при диффузии (а) – отдельного протона и (б) – протона во вращающейся диффундирующей молекуле.

Для исследований динамических процессов при низких переданных энергиях оказались незаменимыми методы обратного рассеяния и спинового эха, которые позволяют достичь предельно высокого энергетического разрешения ( $10^{-7}$  и  $10^{-9}$  эВ, соответственно). В *спектрометрах обратной геометрии* [Birg et al., 1971] разделение энергии производится с помощью отражений под углом Брэгга, близком к  $90^\circ$ . При этих условиях геометрический вклад в функцию разрешения убывает при увеличении угла Брэгга как  $1/\text{tg}\theta$  и разрешение прибора может быть сделано очень высоким. Сканирование на спектрометре производится доплеровским смещением с помощью поступательно-вращательных движений кристалла монохроматора. В таком методе диапазон переданных энергий составляет величину порядка 20 мкэВ, разрешение при этом примерно в сто раз выше, чем лучшее разрешение обычных кристаллических спектрометров.

*Метод спинового эха* использует прецессию магнитного момента нейтрона для определения изменения энергии при рассеянии [Mezei, 1972; 1980] (§ 7.7.2, § 16.4.4). Ограничением традиционной нейтронной спектрометрии является компромисс между интенсивностью и разрешением: чем лучше требуется разрешение по энергии, тем больше нейтронов, не удовлетворяющих высоким требованиям монохроматизации ( $\Delta\lambda/\lambda \leq 0.03$ ), приходится выкидывать, тем ниже становится общая интенсивность пучка, и наоборот, чем выше интенсивность, тем хуже монохроматизация пучка, тем хуже становится разрешение по энергии. Этого недостатка лишен метод спинового эха (гл. 7), поскольку разрешение по энергии определяется главным образом величиной интеграла магнитного поля прецессии на его пути, а монохроматизация пучка может быть сколь угодно плохой (традиционно  $0.1 \leq \Delta\lambda/\lambda \leq 0.25$ ), давая прирост



в интенсивности на порядок и более. В результате получается наивысшее разрешение по энергии, достижимое на нейтронных спектрометрах.

Метод применяется в основном в экспериментах по квазиупругому рассеянию для изучения релаксационных процессов, расположенных на энергетической шкале вокруг нуля переданной энергии. В отличие от других методов неупругого рассеяния нейтронов, таких как трехосная спектроскопия или спектроскопия по времени пролета, в методе спинового эха измеряется промежуточная функция рассеяния  $S(q,t)$  в точке обратного пространства  $q$ , в зависимости от времени релаксации изучаемого процесса  $t$ . Диапазон измеряемых величин времени релаксации  $10^{-12} < t < 10^{-7}$  (с) охватывает динамическую шкалу от микроскопических временных масштабов атомных столкновений и спинового обмена до макроскопических времен медленных релаксационных процессов крупных молекул и атомных конгломератов. В отличие от других экспериментальных методов, дающих динамическую информацию, таких как вращение спина мюона, ядерный магнитный резонанс, Мессбауэровская спектроскопия или магнитометрические измерения восприимчивости, метод спинового эха дает доступ к микроскопической информации через значение переданного импульса  $q$  в обратном пространстве и, таким образом, может выступать связующим звеном между перечисленными интегральными методами и традиционной нейтронной спектрометрией.

### 5.5.2 Метод фиксированного окна

Молекулярные твердые тела представляют для нас специальный интерес, поскольку они могут быть эффективным материалом для источников холодных нейтронов (холодных замедлителей, см. главу 9). Исследования методами рассеяния нейтронов коллективных возбуждений в соединениях типа метана и мезителена [Natkaniec et al., 2003] позволили выбрать оптимальное соединение для холодного замедлителя на реакторе ИБР-2 [Шабалин, 2005].

Как правило, молекулы или молекулярные группы в конденсированном веществе имеют несколько равновесных ориентаций, разделенных потенциальными барьерами. Изменение ориентации путем перехода в другой минимум приводит к ориентационному беспорядку. Отклонение осей молекул от равновесной ориентации приводит к ориентационным (либрационным) колебаниям. Когда имеется только одна ориентация возможны вращения, которые не меняют ориентацию молекулы и обычно имеют характер коллективных возбуждений.

При исследованиях вращательных спектров часто применяют *метод фиксированного окна* при определении спектральной интенсивности  $\hbar\omega=0$ . Измеряемая интенсивность пропорциональна [Шпрингер, 1980]:

$$I(0, \vec{q}) = \int_{-\infty}^{\infty} \Gamma_0(\omega) S_s(\vec{q}, \omega) d\omega, \quad (5.5.4)$$

где  $\Gamma_0(\omega)$  – функция разрешения спектрометра при  $\omega=0$ , форму которой для упрощения будем полагать прямоугольной с шириной  $\Delta\omega$ . Функция квазиупругого рассеяния имеет обычный модельный вид:

$$S_s(q, \omega) = \frac{1}{2} \delta(\omega) [1 + j_0(Rq)] + \frac{1 - j_0(Rq)}{\pi\tau [\omega^2 + (2/\tau)^2]}, \quad (5.5.5)$$

где  $j_0$  – сферическая функция Бесселя нулевого порядка,  $R$  – радиус вращения),  $\tau$  – характерное время вращения молекулы. Используя (5.5.4) и (5.5.5), получаем

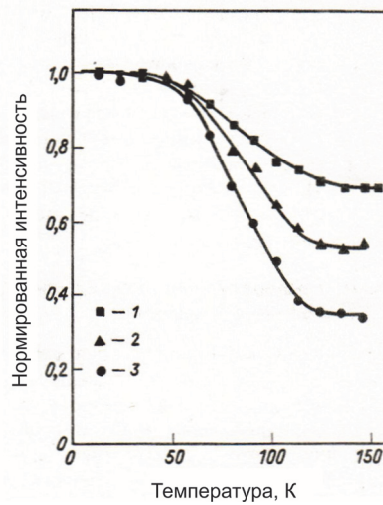
$$I(0, \vec{q}) = \exp(-2w) \{F_0(\vec{q}) + [1 - F_0(\vec{q})] \times (2/\pi) \arctg(\pi\Delta E/\hbar)\}, \quad (5.5.6)$$

где  $\exp(-2w)$  – фактор Дебая-Валлера,  $F_0(\vec{q})$  – некогерентный структурный фактор (интенсивность чисто упругой линии). Вид  $F_0(\vec{q})$  зависит от конкретной модели типа движения. Например, для одноосного вращения по кругу радиуса  $R$

$$F_0(\vec{q}) = j_0^2(R\vec{q} \sin \theta), \quad (5.5.7)$$

где  $\theta$  – угол между  $\vec{q}$  и осью вращения.

Заметим, что некогерентный структурный фактор  $F_0(\vec{q})$  содержит усреднение только по времени отдельной вращающейся молекулы, поэтому основная информация, извлекаемая из некогерентного рассеяния, относится к динамике молекулярных вращений. Обычный (когерентный) структурный фактор содержит еще и усреднение по ансамблю. Поэтому прежде изучения молекулярных вращений определяют ориентационную структуру с помощью когерентной дифракции.



**Рис. 5.5.3.** Температурная зависимость интенсивности квазиупругого рассеяния на вращениях группы  $\text{CH}_3$  в ТММС. 1 –  $q = 0.26 \text{ \AA}^{-1}$ , 2 –  $q = 0.5 \text{ \AA}^{-1}$ , 3 –  $q = 0.9 \text{ \AA}^{-1}$ , [Шпрингер, 1980].

Рассмотрим (5.5.6). При низких температурах внутри «окна» разрешения находится чисто упругая линия и полностью квазиупругий спектр. Фононный спектр находится целиком вне окна. Температурная зависимость определяется фактором Дебая-Валлера и соотношением между энергетическим параметром  $\Delta\omega$  и характерным временем вращения  $\tau$ . При повышении температуры квазиупругая часть спектра уширяется и начинает выходить из окна. В результате интенсивность  $I(0, \vec{q})$  уменьшается до тех пор, пока квазиупругая компонента полностью не уйдет из окна. Останется только чисто упругая линия. В результате на температурной зависимости интенсивности появится «ступенька» с амплитудой  $F_0(\vec{q})$  в интервале, где  $\tau$  близко по величине к  $1/\Delta\omega$ .

Описанная качественная картина иллюстрируется с помощью рис. 5.5.3, на котором приведены результаты измерений методом окна в соединении ТММС ( $\text{N}(\text{CH}_3)_4\text{MnCl}_3$ ).

Интенсивность  $I(0, q)$  определяется при номинально нулевой переданной энергии, ступенька возникает при температуре, когда разрешение становится сравнимым с квазиупругой шириной. Из такого типа данных при различных температурах и векторах рассеяния находят структурный фактор, характеристическое время вращения и энергию активации.

#### Рекомендуемая литература к главе 5

Аксенов В.Л., Плакида Н.М., Стаменкович С. (1984), *Рассеяние нейтронов сегнетоэлектриками*, М.: Энергоатомиздат.

Аксенов В.Л., Тропин Т.В. (2020), *Лекции по теории конденсированного состояния*, М.: Физический факультет МГУ имени М.В.Ломоносова.

Боголюбов Н.Н. (2007), *Собрание научных трудов в 12 томах*, М.: Наука, т. 8.

Изюмов Ю.А., Черноплеков Н.А. (1983), *Нейтронная спектроскопия*, М.: Энергоатомиздат.

Турчин В.Ф. (1963), *Медленные нейтроны*, М.: Госатомиздат.

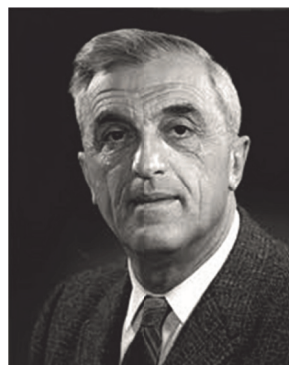
Glyde H.R. (1994), *Excitations in liquid and solid helium*, Oxford, Clarendon Press.

Lovesey S. (1984), *Theory of neutron scattering from condensed matter, Vol. 1, Nuclear scattering*, Oxford: Clarendon press.

## ГЛАВА 6. МАГНИТНОЕ РАССЕЯНИЕ НЕЙТРОНОВ

До сих пор мы полагали, что рассеяние нейтронов в веществе обусловлено полностью их взаимодействием с атомными ядрами. Такое рассмотрение оправдано для немагнитных веществ, у которых магнитный момент электронной оболочки атомов равен нулю. Если это не так, то магнитный момент нейтрона будет взаимодействовать с магнитным моментом атома, что приведет к дополнительному вкладу в сечение рассеяния, обусловленному магнитным рассеянием, сечение которого по порядку величины обычно совпадает с сечением ядерного рассеяния, а в некоторых случаях (критическое рассеяние в ферромагнетиках, рассеяние в антиферромагнетиках около магнитных брэгговских пиков и др.) и значительно превышает. Магнитное рассеяние является важнейшим преимуществом нейтронов при микроскопических исследованиях магнитных материалов. Использование этого метода позволило впервые расшифровать структуры антиферромагнетиков [Shull and Smart, 1949; Озеров, 1952] и несоизмеримых магнитных систем [Herpin and Meriel, 1961; Изюмов, 1987], наблюдать магнитные возбуждения (спиновые волны) [Brockhouse, 1957] и новые особенности доменных структур [Burgu et al., 1950].

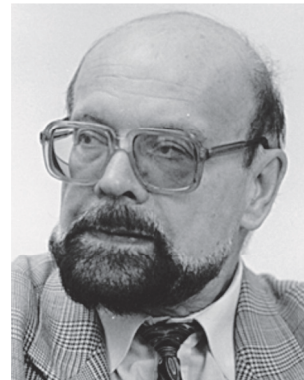
Феликс Блох (Felix Bloch) (23.10.1905 – 10.09.1983) швейцарский физик, работавший главным образом в США. Выдающиеся результаты в физике магнетизма, нейтронной физике, физике атомного ядра. Нобелевская премия по физике (1952 г. вместе с Э.М.Пёрселом) за развитие новых методов для точных ядерных магнитных измерений и связанные с этим открытия.



Джулиан Сеймур Швингер (12.02.1918 – 16.07.1994) американский физик. Выдающиеся результаты в таких разделах теоретической физики как атомная и ядерная физика, физика элементарных частиц, статистическая механика, общая теория относительности. Нобелевская премия по физике (1965 г., вместе с Р.Фейнманом и С.Томонагой) за фундаментальные работы по квантовой электродинамике, имевшие глубокие последствия для физики элементарных частиц.

В 1936 г. Феликс Блох [Bloch, 1936] опубликовал статью «К магнитному рассеянию нейтронов», в которой он предложил прямой метод измерения магнитного момента нейтрона с помощью рассеяния нейтронов в намагниченном веществе (например, железе). Его метод основывался на классическом диполь-дипольном взаимодействии нейтрона и ферромагнитного иона и получении пучка поляризованных нейтронов за счет интерференции ядерного и магнитного рассеяния в ферромагнетике. Хотя статья была посвящена измерению магнитного момента нейтрона, в ней были сформулированы задачи, определившие дальнейшее развитие. Вскоре Джулиан Швингер [Schwinger, 1937] провел более детальное математическое рассмотрение идей Блоха, он использовал формализм Дирака для описания взаимодействия нейтрона не как точечного диполя, а как элемента тока с плотностью тока атомных электронов и устранил ошибку Блоха в выражении для сечения рассеяния (см. §6.1). Основываясь на статьях Блоха и Швингера, Хальперн и Джонсон [Halpern and Johnson, 1937; 1939], рассмотрели подробно взаимодействие между нейтроном и спиновым магнитным моментом атома и получили основные формулы для магнитного рассеяния нейтронов. Эти работы, по существу, заложили основы теоретических и экспериментальных исследований по магнитному рассеянию и получению поляризованных нейтронов. Дальнейшее развитие основных положений теории было сделано в работах [Бронштейн, 1937; Van Hove, 1954; Малеев, 1958; 1961; Изюмов и Малеев, 1961; Изюмов, 1962; Blume, 1963; 1964] и др.

Юрий Александрович Изюмов (28.05.1933 – 20.07.2010), российский физик, доктор физико-математических наук, профессор, действительный член РАН. Разработал теорию рассеяния медленных нейтронов в магнитоупорядоченных кристаллах; внедрил теорию симметрии кристаллов (неприводимые представления пространственных групп) в магнитную нейтронографию; предсказал ряд эффектов в рассеянии поляризованных нейтронов. Автор 12 монографий, 6 из них переведены на английский язык. Государственная премия СССР в области науки (1986 г.) за создание новых методов исследования твердого тела с помощью рассеяния нейтронов на стационарных ядерных реакторах.



Полное изложение теории магнитного рассеяния на современном уровне требует одновременного изложения базовых моделей магнетизма (например, [Изюмов и Скрябин, 2002]), а также теории симметрии кристаллов, а именно теории представлений пространственных групп и теории симметрии магнитных структур, что не входит в нашу задачу. Эти вопросы последовательно изложены в монографиях [Изюмов и др., 1981; Изюмов и Черноплеков, 1983]. В этой главе мы кратко изложим общие понятия теории магнитного рассеяния. Для получения

более подробных сведений можно рекомендовать уже упомянутые монографии, а также [Lovesy, 1984, vol. 2; Малеев, 2002; Squires, 2012]. Поляризованные нейтроны будут рассмотрены в следующей главе.



Сергей Владимирович Малеев (03.06.1931 – 20.02.2021), российский физик, доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник теоретического отдела Петербургского института ядерной физики им. Б.П.Константинова НИЦ «Курчатовский институт». Входит в сотню самых цитируемых учёных России. В 1962 одновременно (и независимо) с Блюме разработал теорию рассеяния поляризованных нейтронов в веществе, в 1994 теоретически применил метод рассеяния поляризованных нейтронов для исследования хиральных магнитных структур. Государственная премия СССР в области науки (1986 г.) за создание новых методов исследования твердого тела с помощью рассеяния нейтронов на стационарных ядерных реакторах.

### § 6.1 Магнитное взаимодействие

В отличие от ядерного рассеяния, амплитуду магнитного рассеяния можно вычислить (как и для рентгеновских лучей), так как в этом случае взаимодействие имеет электромагнитную природу. Правда сложность этих вычислений сильно зависит от типа магнитного материала. Имеется два предельных случая, для которых разработаны схемы расчетов. Первый (более простой) – когда электроны хорошо локализованы (диэлектрики, полупроводники, редкоземельные металлы); второй – когда неспаренные электроны достаточно подвижны (3-d металлы, зонные полупроводники). Модели для этих двух случаев называют атомными и зонными, соответственно. Для ряда магнитных материалов (например, актинидов) недостаточно одной из этих моделей и требуется более сложный, комбинированный подход. Описание общих черт магнитного рассеяния не основано на свойствах конкретных материалов, поэтому мы, в основном, будем ориентироваться на модель локализованных электронов.

Рассмотрим взаимодействие нейтрона с электронами атома. Магнитный момент нейтрона порождает дипольное электромагнитное поле. Поведение электрона в электромагнитном поле, определяемом векторным и скалярным потенциалом  $(\vec{A}, \phi)$ , описывается *уравнением Дирака* [Ландау и Лифшиц, 2001, т.4, § 33]:

$$\left[ E - e\phi - c\vec{\alpha} \cdot \left( \vec{p} - \frac{e\vec{A}}{c} \right) - mc^2\beta \right] \Psi = 0, \quad (6.1.1)$$

где  $E$ ,  $e$ ,  $\vec{p}$  и  $m$  – энергия, заряд, импульс и масса *дираковской частицы*, соответственно;  $\vec{\alpha}$  и  $\beta$  – матрицы и  $\Psi$  – четырехкомпонентный спинор Дирака:

$$\vec{\alpha} = \begin{pmatrix} 0 & \vec{\sigma} \\ \vec{\sigma} & 0 \end{pmatrix}, \quad \beta = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad \Psi = \begin{pmatrix} \Psi_A \\ \Psi_B \end{pmatrix}, \quad (6.1.2)$$

здесь функции  $\Psi_A$  и  $\Psi_B$  каждая имеет две компоненты, а  $\vec{\sigma}$  – *матрицы Паули*:

$$\vec{\sigma}_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{\sigma}_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{\sigma}_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad (6.1.3)$$

Уравнение (6.1.1) принимает вид:

$$\left\{ \begin{array}{l} (E - e\varphi - mc^2)\Psi_A - c\vec{\sigma} \cdot \left( \vec{p} - \frac{e\vec{A}}{c} \right) \Psi_B = 0 \\ (E - e\varphi + mc^2)\Psi_B - c\vec{\sigma} \cdot \left( \vec{p} - \frac{e\vec{A}}{c} \right) \Psi_A = 0 \end{array} \right\}, \quad (6.1.4)$$

с использованием разложения до второго порядка по  $1/c$ , где  $c$  – скорость света, оно описывает изменение энергии  $\varepsilon = E - mc^2$  с необходимой точностью [Carpenter and Loong, 2015]:

$$\begin{aligned} \varepsilon = e\varphi + \frac{1}{2m} \vec{p}^2 \left( 1 - \frac{\vec{p}^2}{4m^2c^2} \right) - \frac{e\hbar^2}{4m^2c^2} \nabla \cdot (\nabla\varphi) + \frac{e\hbar^2}{4m^2c^2} \vec{\sigma} \cdot (\nabla\varphi \times \vec{p}) + \\ + \frac{e^2}{2mc^2} \vec{A}^2 - \frac{e\hbar}{2mc} \vec{\sigma} \cdot (\nabla \times \vec{A}) + \frac{e}{2mc} (\vec{p} \cdot \vec{A} + \vec{A} \cdot \vec{p}) \end{aligned} \quad (6.1.5)$$

Опишем члены в правой части выражения (6.1.5) в применении к электрону по порядку их следования: первый – электростатическая энергия, второй – кинетическая энергия с релятивистскими поправками, третий – релятивистская поправка к взаимодействию точечного заряда электрона с электростатическим полем (член Дарвина), четвертый – спиновое взаимодействие движущегося электрона с электростатическим полем, пятый – диамагнитный отклик электрона на магнитное поле, шестой и седьмой члены – магнитное диполь-дипольное взаимодействие спина электрона и орбитального тока с магнитным моментом поля, соответственно.

Уравнение (6.1.1) справедливо и для нейтрона (тоже дираковской частицы). Поэтому мы можем рассматривать перечисленные взаимодействия в применении к нейтрону, имеющему магнитный момент и находящемуся в электромагнитном поле электронов атома, с которым сталкивается нейтрон. На рассеяние влияют взаимодействия, начиная с третьего (член Дарвина) – как было показано Фолди (Foldi), это «прямое» взаимодействие нейтрона и электрона, связанное с релятивистским «дрожанием» (zitterbewegung) нейтрона, вызванного интерференцией положительной и отрицательной компонент энергии дираковского волнового пакета. В результате такого специфического движения магнитный момент нейтрона порождает электрический момент, отличный от

гипотетического собственного ЭДМ. Плотность заряда электрона ощущает этот электрический момент внутри области дрожания нейтрона, что приводит к эффективному отталкиванию – взаимодействию Фолди. Было предпринято много попыток измерения амплитуды  $n$ -е рассеяния в связи с задачей определения среднеквадратичного радиуса распределения заряда на нейтроне [Александров, 1992]. Ввиду сложностей интерпретации, окончательного решения этой задачи нет. Различные измерения дают значения амплитуды  $n$ -е рассеяния в интервале: –  $(1.3 - 1.6) 10^{-3}$  ферми. Четвертый член – это взаимодействие Швингера. Пятый член в (6.1.5) – это диамагнитный отклик электронного облака на спин нейтрона. Он, так же как и взаимодействия Швингера и Фолди, не дает существенного вклада в рассеяние нейтрона на атомных электронах, однако, про эти три взаимодействия все равно надо помнить на случай прецизионных экспериментов по ядерной физике.

Главный вклад в магнитное рассеяние дает взаимодействие магнитного момента нейтрона с электромагнитным полем, порождаемым электронным током в атоме. Последний складывается из двух компонент: первая обусловлена спиновым моментом (спиновый ток), вторая – его орбитальным моментом (орбитальный ток), которые представлены в (6.1.5) двумя последними членами, соответственно (см. также [Ландау и Лифшиц, 2001, т.8, гл.4]). Рассмотрим это взаимодействие.

$$\vec{V}^M = -\vec{\mu}_n \vec{B} = -\vec{\mu}_n \left[ \text{rot} \vec{A} + \vec{l} \frac{d\vec{l} \cdot \vec{R}}{R^3} \right]. \quad (6.1.6)$$

В (6.1.6)  $\vec{\mu}_n$  – оператор магнитного момента нейтрона:

$$\vec{\mu}_n = \mu_n \vec{\sigma}, \quad (6.1.7)$$

где  $\mu_n$  – магнитный момент нейтрона (§1.1), оператор спина 1/2:  $\vec{\sigma}_n/2 = \vec{s}_n$  выражается тремя взаимно ортогональными матрицами Паули (6.1.3).  $\vec{B}$  – магнитная индукция (средняя напряженность магнитного поля),  $\vec{A}$  – векторный потенциал электромагнитного поля электрона:

$$\vec{A} = \frac{\vec{\mu}_e \times \vec{R}}{R^3}, \quad (6.1.8)$$

где  $\vec{R} = \vec{r} - \vec{r}_e$  – расстояние от электрона до точки измерения поля,  $\vec{r}$  – радиус-вектор нейтрона,  $\vec{r}_e$  – радиус-вектор электрона,  $\vec{\mu}_e$  – оператор магнитного дипольного момента электрона

$$\vec{\mu}_e = -2\mu_B \vec{s}, \quad (6.1.9)$$

$\mu_B$  – магнетон Бора,  $\vec{s}$  – оператор спина электрона в единицах  $\hbar$ , собственные значения его компонент равны  $\pm 1/2$ . Заметим, что, хотя операторы  $\vec{\sigma}$  и  $\vec{s}$  оба связаны с частицами спина 1/2, их определения отличаются на фактор 2.

Второе слагаемое в (6.1.6) происходит от магнитного поля, порожденного в точке  $\vec{R}$  элементом орбитального тока  $\vec{J} d\vec{l}$ : (закон Био и Савара):



$$\vec{J}d\vec{l} = -\frac{e}{m_e} \vec{p} = -\frac{2\mu_B}{\hbar} \vec{p}. \quad (6.1.10)$$

Полное магнитное поле электрона с импульсом  $\vec{p}$  в (6.1.6) запишем в виде

$$\frac{1}{2\mu_B} \vec{B} = \vec{B}_s + \vec{B}_L = \text{rot} \left( \frac{\vec{s} \times \vec{R}}{R^3} \right) - \frac{1}{\hbar} \frac{\vec{p} \times \vec{R}}{R^3}. \quad (6.1.11)$$

Первое слагаемое  $\vec{B}_s$  и второе слагаемое  $\vec{B}_L$  в (6.1.11) – магнитные поля электрона от дипольного момента спина и орбитального момента, соответственно.

Рассмотрим рассеяние медленных нейтронов на свободном атоме. Как было показано Бронштейном [Бронштейн, 1937], магнитное рассеяние медленных нейтронов, для которых длина волны много больше *классического радиуса электрона*:

$$\lambda \gg r_e \left( = \frac{e^2}{m_e c^2} = 2.818 \cdot 10^{-15} \text{ м} \right) \quad (6.1.12)$$

можно рассматривать в рамках первого борновского приближения (гл. 2). Начальное состояние нейтрона обозначим волновым вектором  $k_0$  (плоская волна  $\exp(i\vec{k}_0 \vec{r})$ ) и спиновым квантовым числом  $\sigma^*$ , конечное состояние – волновым вектором  $k_1$  (волна  $\exp(i\vec{k}_1 \vec{r})$ ) и спиновым числом  $\sigma'$ . Дважды дифференциальное сечение рассеяния неполяризованных нейтронов (2.4.10) при переходе атома из начального состояния  $|i\rangle$  в конечное состояние  $|f\rangle$  под воздействием потенциала взаимодействия между нейтроном и мишенью  $V^M$  (6.1.6), (6.1.11) имеет вид:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} = \frac{k_1}{k_0} \left( \frac{m_n}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \left| \langle \vec{k}_1 \sigma' f | V^M | \vec{k}_0 \sigma i \rangle \right|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega). \quad (6.1.13)$$

Поскольку потенциал  $V^M$  содержит спиновые переменные нейтрона, то в (6.1.13) учтены не только волновой вектор  $\vec{k}$ , но и спиновые состояния  $\sigma$ . Угловые скобки обозначают матричный элемент перехода между исходным и конечным состояниями:

$$\langle \vec{k}_1 f | V | \vec{k}_0 i \rangle = \int \Psi_f^* V \Psi_i d\tau, \quad (6.1.13a)$$

где  $\Psi_i, \Psi_f$  – волновая функция электронов атома в состоянии  $|i\rangle$  и  $|f\rangle$ , а интегрирование производится по всем переменным, характеризующим атом. Если какие-то переменные, например, спиновые, изменяются дискретно, то по ним производится суммирование.

Для вычисления матричного элемента перехода в (6.1.13) нам понадобятся следующие математические преобразования.

<sup>\*</sup>) Одинаковые обозначения ( $\sigma$ ) для спинового квантового числа и для сечения рассеяния не должно приводить к затруднениям.

Из определения операций grad и rot следует, что

$$\frac{\vec{R}}{R^3} = -\text{grad} \frac{1}{R}, \quad \text{grad} \left[ \exp i\vec{k} \cdot \vec{R} \right] = i\vec{k} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}). \quad (6.1.14)$$

$$\text{rot} \left[ (\vec{s} \times \vec{k}) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}) \right] = i\vec{k} \times (\vec{s} \times \vec{k}) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}). \quad (6.1.15)$$

Здесь и далее в (6.1.16) – (6.1.20)  $\vec{k}$  (каппа) – формальный параметр.

Операторы grad и rot действуют только на  $\vec{R}$ . Поэтому

$$\begin{aligned} \text{rot} \left( \frac{\vec{s} \times \vec{R}}{R^3} \right) &= -\text{rot} \left( \vec{s} \times \text{grad} \frac{1}{R} \right) = \\ &= -\frac{1}{2\pi^2} \int \frac{1}{\kappa^2} \text{rot} \left[ \vec{s} \times \text{grad} \left( \exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}) \right) \right] d\vec{k} = \\ &= \frac{1}{2\pi^2} \int \frac{1}{\kappa^2} \vec{k} \times (\vec{s} \times \vec{k}) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}) d\vec{k} \end{aligned} \quad (6.1.16)$$

Учтем еще преобразование

$$\int \frac{1}{\kappa^2} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}) d\vec{k} = \frac{2\pi^2}{R}. \quad (6.1.17)$$

Используя соотношения (6.1.14) – (6.1.17), получаем «спиновую» часть матричного элемента магнитного поля

$$\begin{aligned} \langle \vec{k}_1 | \vec{B}_s | \vec{k}_0 \rangle \int \exp(-i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}) \text{rot} \left( \frac{\vec{s}_l \times \vec{R}}{R^3} \right) \exp(i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}) d\vec{r} = \\ \frac{1}{\pi^2} \int \frac{1}{\kappa^2} \exp(-i\vec{q} \cdot \vec{r}) \vec{k} \times (\vec{s}_l \times \vec{k}) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}) d\vec{k} d\vec{r} \end{aligned} \quad (6.1.18)$$

где  $\vec{r}$  – радиус-вектор расположения нейтрона:  $\vec{r} = \vec{r}_l + \vec{R}$ ,  $\vec{r}_l$  – радиус-вектор расположения электрона. Переменная интегрирования может изменяться от  $\vec{r}$  до  $\vec{R}$ , поскольку  $r_l$  – константа, интегрирование по всему пространству эквивалентно соответствующему интегрированию по  $\vec{R}$ . С учетом преобразования

$$\int \exp(i(\vec{k} + \vec{q}) \cdot \vec{R}) d\vec{R} = (2\pi)^3 \delta(\vec{k} + \vec{q}), \quad (6.1.19)$$

получаем

$$\langle \vec{k}_1 | \vec{B}_s | \vec{k}_0 \rangle = 4\pi \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_l) \cdot (\hat{q} \times (\vec{s} \times \hat{q})), \quad (6.1.20)$$

где  $\hat{q} = \vec{q}/q$  – единичный вектор в направлении  $\vec{q}$ .

Для вычисления «орбитальной» части матричного элемента  $\vec{B}_L$  используем следующее выражение

$$\int \frac{\vec{R}}{R^3} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{R}) d\vec{R} = 4\pi i \frac{\hat{q}}{q}. \quad (6.1.21)$$

Этот интеграл берется переходом в полярную систему координат. При интегрировании по азимутальному углу остается только компонента  $\vec{R}$  в направлении  $\vec{q}$ . Для  $\langle \vec{k}_1 | \vec{B}_s | \vec{k}_0 \rangle$  получаем

$$\begin{aligned} \langle \vec{k}_1 | \vec{B}_L | \vec{k}_0 \rangle &= \frac{1}{\hbar} \int \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) \frac{\vec{p}_l \times \vec{R}}{R^3} d\vec{r} = \\ &= \frac{1}{\hbar} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_i) \int \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) \frac{\vec{p}_l \times \vec{R}}{R^3} d\vec{R} = \\ &= \frac{4\pi i}{\hbar q} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_i) (\vec{p}_l \times \hat{q}) \end{aligned} \quad (6.1.22)$$

Заметим, что, хотя операторы  $\vec{p}_l$  и  $\vec{r}_i$  не коммутируют, операторы  $(\vec{p}_l \times \hat{q})$  и  $(\vec{q} \cdot \vec{r}_i)$  коммутируют. Поэтому нет проблем с последовательностью операторов в (6.1.22).

Используя (6.1.20), (6.1.22), получаем

$$\langle \vec{k}_1 | \frac{1}{2\mu_B} \vec{B} | \vec{k}_0 \rangle = \sum_l \langle \vec{k}_1 | (\vec{B}_s + \vec{B}_L) | \vec{k}_0 \rangle = 4\pi \vec{M}_\perp, \quad (6.1.23)$$

где

$$\vec{M}_\perp = \sum_l \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_i) \left[ \hat{q} \times (\vec{s}_l \times \hat{q}) + \frac{i}{\hbar q} (\vec{p}_l \times \vec{q}) \right]. \quad (6.1.24)$$

Сечение рассеяния (6.1.13) принимает вид

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_1} = (\gamma r_e)^2 \frac{k_1}{k_0} \langle \sigma' f | \vec{\sigma} \cdot \vec{M}_\perp | \sigma i \rangle \delta(E_f - E_i - \hbar\omega), \quad (6.1.25)$$

где  $\gamma = 1.913 (= \mu_n / M_n)$ ,  $r_e$  – классический электромагнитный радиус электрона (6.1.12).  $M_\perp$  – есть поперечная компонента (перпендикулярная  $\vec{q}$ ) оператора плотности намагниченности, то есть в рассеяние дает вклад компонента атомного момента в плоскости, перпендикулярной вектору рассеяния. Именно этот результат получил Швингер. У Блоха получалось, что рассеяние обусловлено параллельной компонентой.

Сравним (6.1.25) с основной формулой рассеяния (3.4.13). Отметим два момента. Первый – в обоих случаях в матричный элемент  $\langle \vec{k}_1 | \vec{V} | \vec{k}_0 \rangle$  входит  $\exp(-i\vec{q} \cdot \vec{r})$ , где  $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$  – вектор рассеяния (разность конечного и начального волновых векторов), что является результатом борновского приближения. Второй – при ядерном рассеянии предэкспонента (длина рассеяния) не зависит от  $\vec{q}$ , что является результатом короткодействия ядерного потенциала. При магнитном рассеянии предэкспонента имеет сложную зависимость от  $\vec{q}$ , что обусловлено, с одной стороны, дальнодействием магнитного взаимодействия, а с другой стороны

– нецентральный характер как диполь-дипольного взаимодействия для спина, так и для взаимодействия диполя с орбитальным током.

### §6.2. Амплитуда магнитного рассеяния

На основе выражения (6.1.25) запишем матричный элемент перехода между начальным и конечным состоянием системы, определяющий взаимодействие нейтрона с магнитным полем в мишени (образце) в виде:

$$H_M = -\gamma r_e \vec{M}_\perp. \quad (6.2.1)$$

Оператор намагниченности связан с обобщенной восприимчивостью  $\chi(r, t)$ . Для трансляционно инвариантной системы в стационарном состоянии эта связь определяется выражением

$$\vec{M}(\vec{r}, t) = \iint d\vec{r}' dt' \chi(\vec{r} - \vec{r}', t - t') \vec{H}(\vec{r}', t'), \quad (6.2.2)$$

где  $\vec{H}(\vec{r}', t')$  – магнитное поле электронов. Для упрощения будем пренебрегать зависимостью от времени и рассматриваем нерелятивистский случай. Тогда оператор намагниченности (в единицах  $\mu_B$ ) запишется в виде суммы спиновой ( $S$ ) и орбитальной ( $L$ ) намагниченностей:

$$\vec{M}(\vec{r}) = M_S(\vec{r}) + M_L(\vec{r}), \quad (6.2.3)$$

которые связаны соответственно со спиновым и орбитальным токами (6.1.10), (6.1.11) в соответствии с четвертым уравнением Максвелла (закон Ампера – Максвелла):  $\vec{j}(\vec{r}) = c \operatorname{rot} \vec{B}(\vec{r})$ . Для дальнейшего обсуждения запишем соответствующие токи для электронов с радиусами-векторами  $\vec{r}_e$  и скоростями  $\vec{v}_e$ :

$$\vec{j}_S(\vec{r}) = \sum_e \frac{e\hbar}{m_e} \vec{\nabla} \times [\vec{s} \delta(\vec{r} - \vec{r}_e)], \quad (6.2.4)$$

$$\vec{j}_L(\vec{r}) = \sum_e \frac{e}{2} \times [\vec{v}_e \delta(\vec{r} - \vec{r}_e) + \delta(\vec{r} - \vec{r}_e) \vec{v}_e], \quad (6.2.5)$$

Заметим, что имеется еще член продольного типа, формальное выражение которого можно записать как  $\operatorname{grad} f(r)$ , но он не дает вклада в поперечную компоненту, так как преобразование Фурье от  $\operatorname{grad} f(r)$  есть вектор в направлении  $\vec{q}$ , а  $\vec{q} \times \vec{q} = 0$ .

Рассмотрим связь оператора  $\vec{M}_\perp$  с полным оператором намагниченности  $\vec{M}$  (6.2.3). Начнем со спиновой части. Согласно (6.1.24)

$$\vec{M}_{S\perp}(\vec{q}) = \hat{q} \times (M_S(\vec{q}) \times \hat{q}), \quad (6.2.6)$$

где спиновый оператор намагниченности

$$\vec{M}_S(\vec{q}) = \sum_l \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_l) \vec{s}_l. \quad (6.2.7)$$

С другой стороны, из (6.2.4) следует

$$\vec{M}_L(\vec{q}) = \int \vec{M}_S(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r} = \int \rho_S(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}), \quad (6.2.8)$$

где

$$\rho_S(\vec{r}) = \sum_I \delta(\vec{r} - \vec{r}_I) \vec{s}_I \quad (6.2.9)$$

оператор электронной спиновой плотности. Используя алгебраические свойства векторов, векторное произведение (6.1.31) можно преобразовать к скалярному произведению:

$$\vec{M}_{S\perp}(\vec{q}) = M_S(\vec{q}) - (M_S(\vec{q}) \times \hat{q}) \times \hat{q}, \quad (6.2.10)$$

Вычисление орбитальной части намагниченности [Steinsvoll et al., 1967] проводится с использованием довольно громоздких формул, которые нам не пригодятся в дальнейшем. Поэтому мы приведем только результат. Согласно (6.1.24) представим орбитальную компоненту оператора намагниченности в виде:

$$\vec{M}_{L\perp}(\vec{q}) = \frac{i}{\hbar q} \sum_I \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_I) (\vec{p}_I \times \hat{q}) = \hat{q} \times (M_L(q) \times \hat{q}), \quad (6.2.11)$$

где

$$\vec{M}_L(\vec{q}) = \int \vec{M}_L(\vec{r}) \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) d\vec{r}, \quad (6.2.12)$$

есть оператор орбитальной намагниченности, обусловленной орбитальным током (6.2.5).

Теперь можем записать общее выражение для оператора намагниченности:

$$\vec{M}(\vec{q}) = \vec{M}_S(\vec{q}) + \vec{M}_L(\vec{q}) = \int \vec{M}(\vec{r}) \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) d\vec{r}, \quad (6.2.13)$$

где оператор полной намагниченности

$$\vec{M}(\vec{r}) = \vec{M}_S(\vec{r}) + \vec{M}_L\vec{r}. \quad (6.2.14)$$

Теперь, согласно (6.2.6) и (6.2.13), получаем

$$\vec{M}_{\perp}(\vec{q}) = M_{S\perp}(\vec{q}) + M_{L\perp}(\vec{q}) = \hat{q} \times (\vec{M}(\vec{q}) \times \hat{q}). \quad (6.2.15)$$

Итак, общий вывод состоит в том, магнитное рассеяние нейтронов происходит вследствие взаимодействия магнитного дипольного момента нейтрона с магнитным полем, производимым неспаренными электронами иона. Это поле определяется полной намагниченностью, то есть магнитными моментами спинового и орбитального движения. Аналогично (6.2.10) имеем соотношение

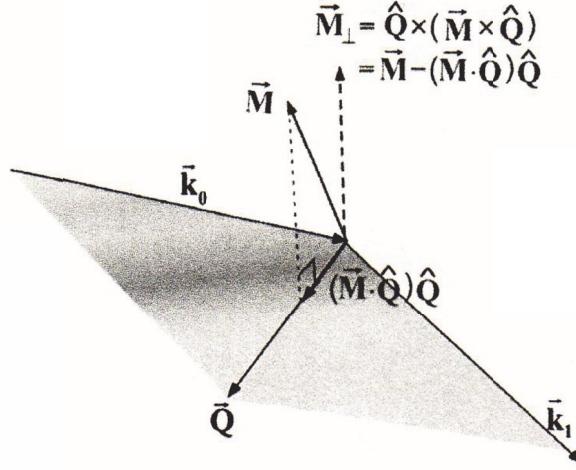
$$\vec{M}_{\perp}(\vec{q}) = \vec{M}(\vec{q}) - (\vec{M}(\vec{q}) \times \hat{q}) \times \hat{q}, \quad (6.2.16)$$

геометрическое представление которого показано на рис. 6.2.1.

Из (6.2.16) следует

$$\begin{aligned}
\vec{M}_\perp^+(\vec{q}) \cdot \vec{M}_\perp(\vec{q}) &= \left[ \vec{M}^+(\vec{q}) - (\vec{M}(\vec{q}) \cdot \hat{q}) \cdot \hat{q} \right] \left[ \vec{M}(\vec{q}) - (\vec{M}(\vec{q}) \cdot \hat{q}) \cdot \hat{q} \right] = \\
&= \vec{M}^+(\vec{q}) \cdot \vec{M}(\vec{q}) - (\vec{M}^+(\vec{q}) \cdot \hat{q})(\vec{M}(\vec{q}) \cdot \hat{q}) = \\
&= \sum_{\alpha\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) (\vec{M}_\alpha(\vec{q}) \vec{M}_\beta(\vec{q}))
\end{aligned} \quad , \quad (6.2.17)$$

где  $\alpha\beta$  обозначают  $x, y, z$  и  $\delta_{\alpha\beta}$  – символ Кронекера.



**Рис. 6.2.1.** Геометрическая интерпретация соотношения (6.2.16) [Carpenter and Loong, 2015].

Используя (6.1.25), (6.2.15) и (6.2.16) определим *амплитуду магнитного рассеяния*:

$$\begin{aligned}
F_m(\vec{q}) &= \vec{\sigma} \cdot \vec{M}_\perp(\vec{q}) = \vec{\sigma} \cdot \vec{q} \times \vec{M}(\vec{q}) \times \hat{q} = \\
&= \vec{\sigma} \left[ \vec{M}(\vec{q}) - (\vec{M}(\vec{q}) \cdot \hat{q}) \cdot \hat{q} \right]
\end{aligned} \quad , \quad (6.2.18)$$

Как видим, амплитуда магнитного рассеяния пропорциональна спину нейтрона и определяется перпендикулярной переданному импульсу частью компоненты Фурье намагниченности. В результате зависимость от  $\vec{q}$  остается и в пределе  $q \rightarrow 0$ , что существенно при малоугловом рассеянии. Зависимость от направления переданного импульса появляется из-за слабого убывания магнитного взаимодействия с расстоянием и описывает эффект размагничивания при конечных  $q$ , по величине сравнимых с обратным размером мишени.

Преыдущее рассмотрение имело общий характер. Теперь мы конкретизируем описание. Первое – положим, мишень представляет собой кристалл и что неспаренные электроны локализованы вблизи равновесных положений ионов в решетке (модель Гайтлера-Лондона). Это означает, что, скажем,  $n$  электронов локализованы на атомных орбиталях в  $l$  конфигурациях и на их движение не

влияет движение атома или межатомное взаимодействие. Поэтому  $r$  и  $v$ , фигурирующие в формулах для спинового (6.2.4) и орбитального (6.2.5) токов отсчитываются от центра атома. Второе – примем ионную конфигурацию, определяемую  $L$ - $S$  связью (связью Рассела-Саундерса). Это означает, что на каждом ионе индивидуальные орбитальные моменты электронов  $l$  складываются и образуют суммарный орбитальный момент с квантовым числом  $L$ , а индивидуальные спиновые моменты  $s$  складываются и образуют суммарный момент с квантовым числом  $S$ . Полный момент количества движения атома характеризуется квантовым числом  $J = L + S$ .

Рассмотрим сначала рассеяние только на спинах, то есть при  $L = 0$ . Этот случай реализуется, когда орбитальный момент фиксируется внутренним электрическим полем кристалла, например, в соединениях элементов группы железа таблицы Менделеева. В сечении рассеяния (6.1.13), (6.1.13а) спиновая часть матричного элемента взаимодействия нейтрона с мишенью содержит спиновый оператор намагниченности (6.2.7), матричный элемент которого имеет вид:

$$\langle f | \sum_l \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_l) \cdot \vec{s}_l | i \rangle. \quad (6.2.19)$$

В выражении (6.2.19) спиновые переменные нейтрона и рассеивателя разделены, поэтому можно разбить суммирование по  $l$  на суммирование по электронам отдельного атома  $\sum_v$  и на суммирование по всем атомам рассеивателя  $\sum_j$ . Рассмотрим чисто магнитное рассеяние, когда состояние решетки не меняется, а  $|i\rangle$  характеризуется набором спиновых проекций для атомов. В этом случае можно написать

$$\langle f | \sum_l \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_l) \cdot \vec{s}_l | i \rangle = \sum_l^N \exp(i\vec{q} \cdot \vec{R}_j) \langle f | \sum_v^{z_j} \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}_v) \cdot \vec{s}_v | i \rangle, \quad (6.2.20)$$

где  $z_j$  – число электронов в незаполненной оболочке для атома  $j$ .

Учтем, что медленные нейтроны не вызывают переходов атомов (ядер) в возбужденные энергетические состояния, а производят лишь переориентацию атомного спина. Таким образом, переход  $|i\rangle \rightarrow |f\rangle$  имеет вид  $|\alpha m\rangle \rightarrow |\alpha m'\rangle$ , где  $m$  и  $m'$  – наборы спиновых квантовых чисел для атомов рассеивателя, а  $\alpha$  – совокупности остальных квантовых чисел атомов.

Для преобразования (6.2.20) воспользуемся преобразованиями векторной алгебры [Кондон и Шортли, 1949]: если проекции векторной величины  $T_k$  ( $k = x, y, z$ ) удовлетворяют перестановочному соотношению  $[J_i, T_k] = i\hbar e_{ikl} T_l$ , где  $J_i$  – проекция оператора момента количества движения, то имеет место соотношение  $J(J+1)\langle \alpha J m | \vec{T} | \alpha' J m' \rangle \langle \alpha J m' | \vec{J} \vec{T} | \alpha' J m \rangle$ .

Здесь  $J$  – величина полного момента количества движения системы,  $m$  – его проекция. Применяя это соотношение к оператору  $\vec{T} \equiv \sum_v \exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}_v)\vec{s}_v$ , получим

$$\langle f | \sum_l \exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}_l) \cdot \vec{s}_l | i \rangle = \langle m' | \vec{S}_j | m \rangle \langle \alpha m | \sum_v \frac{\exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}_v) \cdot (\vec{s}_v \vec{S}_j)}{S_j(S_j+1)} | \alpha m \rangle, \quad (6.2.21)$$

где  $\vec{S}_j = \sum_v \vec{s}_v$  – оператор спина атома  $j$ , а  $S_j$  – величина спина.

Введем обозначение

$$F_j(\vec{q}) \equiv \langle \alpha m | \sum_v \frac{\exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}_v) \cdot (\vec{s}_v \vec{S}_j)}{S_j(S_j+1)} | \alpha m \rangle = \int \Psi_j^* \sum_v \frac{\exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}_v) \cdot (\vec{s}_v \vec{S}_j)}{S_j(S_j+1)} \Psi_j d\tau_j, \quad (6.2.22)$$

где  $\Psi_j$  – волновая функция электронов  $j$ -го атома;  $d\tau_j$  – элемент объема в конфигурационном пространстве электрона  $j$ -го атома не зависит от квантового числа  $m$ , т.е. от ориентации атомного спина и служит характеристикой рассеивающей способности атома. Эту величину называют *магнитным формфактором атома* (точнее, ее следовало бы назвать спиновым формфактором).  $F_j(\vec{q})$  характеризует распределение спиновой плотности в атоме. При  $z_j=1$  магнитный формфактор атома  $F_j(\vec{q})$  представляет собой просто фурье-компоненту спиновой плотности.

Обсудим физический смысл магнитного формфактора атома, рассматривая для простоты случай одного магнитоактивного электрона [Гуревич и Тарасов, 1965]. Выражение (6.2.22) можно, очевидно, переписать в виде:

$$F(\vec{q}) = \langle \alpha | \exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}) | \alpha \rangle = \int \exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}) \psi_\alpha^* \psi_\alpha d\vec{r}. \quad (6.2.23)$$

Таким образом,

$$F(\vec{q}) = \int \exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}) \rho(\vec{r}) d\vec{r},$$

где  $\rho(\vec{r})$  – есть вероятность обнаружить электрон в единичном объеме около точки  $\vec{r}$ .

Если рассеяние нейтронов происходит точно вперед, то в этом случае никакого относительного сдвига фаз у волн, рассеянных в разных точках, не наблюдается. Поэтому формфактор для такого рассеяния должен равняться единице:

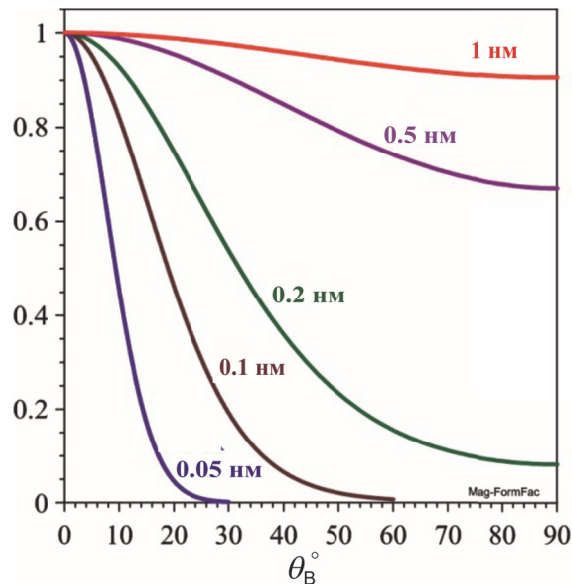
$$F(0) = \left( \int \exp(i\vec{q}\cdot\vec{r}) \rho(\vec{r}) d\vec{r} \right)_{q=0} = \int \rho(\vec{r}) d\vec{r} = 1. \quad (6.2.24)$$

Атомный формфактор в случае магнитного рассеяния нейтронов аналогичен атомному формфактору в случае рассеяния рентгеновских лучей. Во всех этих случаях длина волны излучения имеет такой же порядок величины, что и сам рассеиватель (т.е. электронное облако), и функция  $F(\vec{q})$  отражает эффект



интерференции волн, рассеянных от разных точек электронного облака. В случае ядерного рассеяния медленных нейтронов формфактор типа  $F$  отсутствует, поскольку размеры рассеивателя (ядра) существенно меньше длины волны нейтрона: рассеяние происходит как бы на точечном рассеивателе.

Атомный формфактор в случае рассеяния нейтронов, как для рентгеновских лучей, уменьшается при увеличении переданного импульса, однако, гораздо быстрее. Более быстрое спадание функции  $F(\vec{q})$  с увеличением аргумента в случае нейтронов объясняется тем, что магнитное рассеяние нейтронов происходит не на всех электронах атома, как это имеет место в случае рентгеновских лучей, а только на магнитоактивных электронах. Внутренние заполненные электронные оболочки атома в магнитном рассеянии нейтронов не участвуют, вследствие чего достаточно малые значения  $r$  в интеграл (6.2.21) практически не вносят вклада. Из общих свойств фурье-преобразований следует, что из-за этого уменьшается вклад в  $F(\vec{q})$  при больших  $q$ , т.е. при больших углах рассеяния.



**Рис. 6.2.2.** Поведение магнитного формфактора в зависимости от угла Брэгга  $\theta_B$  [град] и длины волны нейтронов [нм].

Зависимость магнитного атомного формфактора от длины волны нейтрона обуславливает уменьшение магнитного рассеяния с увеличением энергии нейтронов. На рис. 6.2.2 представлен магнитный атомный формфактор для атома железа в зависимости от угла Брэгга при нескольких фиксированных значениях длины волны нейтрона. Чем меньше длина волны, тем быстрее спадает формфактор с увеличением угла рассеяния. Например, уменьшение формфактора в 10 раз происходит для нейтронов с длиной волны  $\lambda = 10^{-8}$  см (0.1 нм) при угле

$37^\circ$ , для нейтронов с  $\lambda = 0.05$  нм при угле  $18^\circ$ , а для нейтронов с  $\lambda = 0.01$  нм при угле всего  $3^\circ$ . Таким образом, по мере увеличения энергии нейтронов магнитное рассеяние начинает сосредотачиваться внутри быстро сужающейся области углов рассеяния вблизи нуля. Именно по этой причине эффект магнитного рассеяния оказывается существенным только в пределах области энергий медленных нейтронов.

Матричные элементы орбитальной части магнитного формфактора существенно зависят от атомных волновых функций, поэтому соответствующие результаты могут быть получены только после конкретных расчетов. Вообще, учет взаимодействия нейтрона с орбитальным моментом атома при рассеянии представляет сложную и каждый раз весьма специфическую задачу. Однако интерпретация данных по рассеянию нейтронов в магнетиках сильно упрощается благодаря одному важному обстоятельству, а именно, подавлению орбитального момента атома электрическим полем кристалла.

Несмотря на то, что в изолированных атомах переходного элемента вследствие наличия орбитального момента в кристалле  $J \neq S$ , все же эффективным значением полного механического момента  $J$  является  $S$ . Это и указывает на то, что орбитальный момент в этих атомах заморожен. Поэтому для переходных металлов вклад орбитального момента в формфактор также несуществен и можно с хорошей степенью точности считать его чисто спиновым. Например, расчеты магнитного форм-фактора для никеля  $\text{Ni}^{2+}$ , показали, что вклад орбитального момента в формфактор изменяет его примерно на 4% против спинового форм-фактора.

В случае редкоземельных ионов в металлах и слоях незаполненные  $4f$ -оболочки атомов этих элементов находятся достаточно глубоко и экранируются внешними замкнутыми  $5s^25p^6$  оболочками. В результате действие кристаллического поля на состояния  $4f$  электронов оказывается весьма слабым и хорошим квантовым числом для таких атомов в кристалле является  $J$ .

До сих пор излагалась теория рассеяния нейтронов на локализованной системе магнитных моментов в предположении, что атомные магнитные моменты переходных элементов в кристалле в основном сохраняют свои локализованные состояния. Эти представления хорошо применимы к неметаллическим соединениям переходных элементов, а также к редкоземельным металлам и их сплавам.

В  $d$ -металлах вследствие сильного перекрытия волновых функций  $d$ -электронов с волновыми функциями соседей существует сильная делокализация этих электронов, приводящая, в частности, к дробным магнитным моментам атомов в металле и к большому отклонению их величины по сравнению с магнитным моментом изолированного атома. Для таких систем представление о локализованном моменте является очень грубым, и более последовательный подход к изучению рассеяния нейтронов в них должен строиться на основе модели коллективизированных электронов [Изюмов и Черноплеков, 1983].

### § 6.3. Рассеяние неполяризованных нейтронов

Как уже отмечалось в начале этой главы, основные формулы для магнитного рассеяния нейтронов были получены в работе [Halpern and Johnson, 1939], где изучалось рассеяние неполяризованных нейтронов на системе атомов, обладающих локализованным магнитным моментом. В этом параграфе мы рассмотрим эту классическую работу в формализме корреляционных функций Ван Хофа (гл. 4), что позволит наглядно продемонстрировать основные закономерности магнитного рассеяния. Взаимодействие нейтронов с мишенью есть сумма ядерного (2.4.11) и магнитного (6.1.6) взаимодействий:

$$V = \sum_i \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} b_i \delta(\vec{r} - \vec{R}_i) + \sum_i V_i^M, \quad (6.3.1)$$

где  $\vec{R}_i$  – координата  $i$ -го атома,  $b_i$  – амплитуда рассеяния на закрепленном ядре  $i$ -го атома. Если у ядра есть собственный спин, то  $b_i$  определяется выражением (2.5.4), которое с учетом (2.5.6) представим в виде

$$b_i = b_i^k + \frac{2(b_{i+} - b_{i-})}{2j+1} \vec{s}_i \cdot \vec{\sigma}, \quad (6.3.2)$$

где  $\vec{s}_i, \vec{\sigma}$  – операторы спина ядра и нейтрона, соответственно;  $j$  – спин ядра;  $b_{i+}, b_{i-}$  – длины рассеяния при параллельных и антипараллельных ориентациях спинов ядер и нейтрона (§ 2.5). Величина  $b_i$  (6.3.2) является оператором по отношению к координатам ядра и к спину.

Матричный элемент магнитного взаимодействия был получен последовательно в § 6.1. Перепишем его [Турчин, 1963] в обозначениях работы [Halpern and Johnson, 1939]:

$$\begin{aligned} \langle \vec{k}, a_i | V_i^M | \vec{k}_0, a_i^{(0)} \rangle &= \frac{4\pi}{m_n} \hbar^2 r_e \gamma F_i(\vec{q}) \exp(-i\vec{q}\vec{R}_i) \times \\ &\times \langle m_i' | (\hat{q}\vec{\sigma}) (\hat{q}\vec{S}_i) - \vec{\sigma}\vec{S}_i | m_i^{(0)} \rangle \end{aligned} \quad (6.3.3)$$

Здесь магнитный форм-фактор  $i$ -го атома  $F_i(\vec{q})$  определен согласно (6.2.22), где под  $\vec{r}_l$  понимается радиус-вектор  $l$ -го электрона относительно ядра;  $\vec{S}_i$  – полный спиновый момент электронной оболочки  $i$ -го атома.

Обозначим через  $i$  и  $f$ , как и в гл. 2, начальное и конечное состояния мишени, включая спиновые переменные нейтрона. В системе атомов координаты  $\vec{R}_i$  являются динамическими переменными, и матричный элемент магнитного взаимодействия принимает вид

$$\langle \vec{k}, f | V^M | \vec{k}_0, i \rangle = \sum_i \frac{4\pi}{m_n} \hbar^2 r_e \gamma F_i(\vec{q}) \left[ \exp(-i\vec{q}\vec{R}_i) \Pi_i \right]_i^f, \quad (6.3.4)$$

где введен оператор магнитного рассеяния на  $i$ -ом атоме

$$\Pi_i \equiv (\hat{q}\vec{\sigma})(\hat{q}\vec{S}_i) - \vec{\sigma}\vec{S}_i. \quad (6.3.5)$$

Таким образом, для матричного элемента взаимодействия получаем

$$\begin{aligned} \langle \vec{k}, f | V | \vec{k}_0, i \rangle &= \sum_i \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} \left[ b_i \exp(-i\vec{q}\vec{R}_i) \right]_i^f + \\ &+ \sum_i \frac{4\pi}{m_n} \hbar^2 r_e \gamma F_i(\vec{q}) \left[ \Pi_i \exp(-i\vec{q}\vec{R}_i) \right]_i^f = \\ &= \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} \sum_i \left[ A_i \exp(-i\vec{q}\vec{R}_i) \right]_i^f \end{aligned} \quad (6.3.6)$$

где величина

$$A_i \equiv b_i + 2r_e \gamma F_i(\vec{q}) \Pi_i \quad (6.3.7)$$

есть амплитуда рассеяния на  $i$ -м атоме, включая и ядерное, и магнитное рассеяния.

Итак, магнитное взаимодействие приводит к тому, что к амплитуде ядерного рассеяния  $b_i$  добавляется член  $2r_e \gamma F_i(\vec{q}) \Pi_i$  – амплитуда магнитного рассеяния. Теперь суммарная амплитуда рассеяния зависит не только от спинов нейтрона и ядра, но и от спина атома.

Формализм корреляционных функций, изложенный в общем виде в гл. 4, легко распространяется на случай наличия магнитного рассеяния, для этого достаточно лишь заменить  $b_i$  на  $A_i$ . Запишем дважды дифференциальное сечение:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k}{k_0} \frac{1}{2\pi\hbar} \int \exp(-i\alpha t) \chi(\vec{q}, t) dt, \quad (6.3.8)$$

$$\chi(\vec{q}, t) = \sum_{i,j} \left\langle A_i(0) \exp(i\vec{q}\vec{R}(0)) A_j(t) \exp(-i\vec{q}\vec{R}(t)) \right\rangle. \quad (6.3.9)$$

Мы будем пренебрегать спин-решеточным взаимодействием, т.е. считать, что спиновое состояние атома не влияет на его движение в решетке. Тогда

$$\chi(\vec{q}, t) = \sum_{i,j} \left\langle \exp(i\vec{q}\vec{R}(0)) \exp(-i\vec{q}\vec{R}(t)) \right\rangle \left\langle A_i(0) A_j(t) \right\rangle. \quad (6.3.10)$$

В отличие от ядерной амплитуды  $b(t)$ , которую можно считать не зависящей от времени, так как вклад ядерных спинов в гамильтониан пренебрежимо мал, магнитная амплитуда существенно зависит от времени (кроме случая парамагнетиков). Из (6.3.7) находим

$$\begin{aligned} \left\langle A_i(0) A_j(t) \right\rangle &= \left\langle b_i \cdot b_j \right\rangle + 4r_e^2 \gamma^2 F_i(\vec{q}) F_j(\vec{q}) \times \\ &\times \left\langle \Pi_i(0) \Pi_j(t) \right\rangle + 2r_e \left\langle b_j F_i(\vec{q}) \Pi_i + b_i F_j(\vec{q}) \Pi_j \right\rangle \end{aligned} \quad (6.3.11)$$

Первый член в (6.3.11) описывает ядерное рассеяние, второй – магнитное, третий – *интерференционное магнитно-ядерное рассеяние*. Для неполяризованных нейтронов интерференционное рассеяние исчезает, ибо  $\langle \Pi \rangle = 0$ , а

усреднение по спину нейтрона в магнитном рассеянии выполняется следующим образом. Направим ось  $z$  по вектору  $\vec{q}$ . Тогда

$$\begin{aligned} \langle \Pi_i(0) \Pi_j(t) \rangle &= \langle (\sigma_x S_{ix}(0) - \sigma_y S_{iy}(0)) \times (\sigma_x S_{jx}(t) - \sigma_y S_{jy}(t)) \rangle = \\ &= \frac{1}{4} \langle S_{ix}(0) S_{jx}(t) + S_{iy}(0) S_{jy}(t) \rangle = \frac{1}{4} \langle S_i(0) S_j(t) - S_{iz}(0) S_{jz}(t) \rangle, \end{aligned} \quad (6.3.12)$$

что можно также записать в виде

$$\begin{aligned} \langle \Pi_i(0) \Pi_j(t) \rangle &= \frac{1}{4} \langle S_i(0) S_j(t) - (\hat{q} \vec{S}_i(0) (\hat{q} \vec{S}_j(t))) \rangle = \\ &= \frac{1}{4} \sum_{\alpha, \beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) \langle S_{i\alpha}(0) S_{j\beta}(t) \rangle \end{aligned} \quad (6.3.13)$$

Таким образом, для неполяризованных нейтронов сечение магнитного рассеяния есть

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \sigma^M}{d\Omega dE_1} &= (r_e \gamma)^2 \frac{k_1}{k_0} \sum_{i,j} F_i(\vec{q}) F_j(\vec{q}) \times \\ &\times \frac{1}{2\pi\hbar} \int dt \cdot \exp(-i\alpha t) \langle \exp(i\vec{q}\vec{R}(0)) \exp(-i\vec{q}\vec{R}(t)) \rangle \times \\ &\times \sum_{\alpha, \beta} (\delta_{\alpha\beta} - q_\alpha q_\beta) \langle S_{i\alpha}(0) S_{j\beta}(t) \rangle \end{aligned} \quad (6.3.14)$$

Функция  $\chi_{ij}(\vec{q}, t)$  для магнитного рассеяния является произведением двух корреляционных функций, из которых первая описывает корреляции в движении атомов и детально изучена нами в предыдущих главах, а вторая – корреляции между атомными спинами. В каждой из этих функций можно выделить часть, которая не зависит от времени. Эта часть является пределом корреляционной функции при  $t \rightarrow \infty$  и описывает «упругое» в отношении рассматриваемых степеней свободы рассеяние. Для координатной корреляционной функции эта часть есть

$$\begin{aligned} \lim_{t \rightarrow \infty} \langle \exp(i\vec{q}\vec{R}_i(0)) \exp(-i\vec{q}\vec{R}_j(t)) \rangle &= \langle \exp(i\vec{q}\vec{R}_i) \rangle \langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_j) \rangle = \\ &= \exp(i\vec{q}\rho_i) \exp(-W_i) \exp(i\vec{q}\rho_j) \exp(-W_j) \end{aligned} \quad (6.3.15)$$

где  $\rho_i$  и  $\rho_j$  – равновесные положения  $i$ -го и  $j$ -го атомов, а  $\exp(-W_i)$  и  $\exp(-W_j)$  – тепловые факторы Дебая-Валлера (см. § 5.1). Для спиновой корреляционной функции это

$$\sum_{\alpha, \beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) \langle S_{i\alpha} \rangle \langle S_{j\beta} \rangle. \quad (6.3.16)$$

В результате сечение магнитного рассеяния распадается на четыре части

$$\frac{d^2 \sigma^M}{d\Omega dE_1} = \frac{d^2 \sigma_{ee}}{d\Omega dE_1} + \frac{d^2 \sigma_{ie}}{d\Omega dE_1} + \frac{d^2 \sigma_{ei}}{d\Omega dE_1} + \frac{d^2 \sigma_{ii}}{d\Omega dE_1}, \quad (6.3.17)$$

где первый индекс  $e$  или  $i$  означает, что рассеяние является упругим или неупругим в отношении движения атомов, второй индекс – то же в отношении переворота атомных спинов.

Для упругого в обоих отношениях рассеяния, которое является упругим в полном смысле слова, получаем после интегрирования по  $dE$

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{ee}}{d\Omega} &= (r_e\gamma)^2 \sum_{i,j} F_i(\vec{q}) \exp(-W_i) F_j(\vec{q}) F_j(\vec{q}) \exp(i\vec{q}(\rho_i - \rho_j)) \times \\ &\times \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) \langle S_{i\alpha} \rangle \langle S_{j\beta} \rangle \end{aligned} \quad (6.3.18)$$

Это рассеяние происходит без изменения состояния магнетика.

Второй член в формуле (6.3.17)

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma_{ie}}{d\Omega dE} &= (r_e\gamma)^2 \frac{k}{k_0} \sum_{i,j} F_i(\vec{q}) F_j(\vec{q}) \times \\ &\times \frac{1}{2\pi\hbar} \int dt \cdot \exp(-i\omega t) \left\{ \exp(i\vec{q}\vec{R}_i(0)) \exp(-i\vec{q}\vec{R}_j(t)) - \right. \\ &\left. - \langle \exp(i\vec{q}\vec{R}_i) \rangle \langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_j) \rangle \right\} \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) \langle S_{i\alpha} \rangle \langle S_{j\beta} \rangle \end{aligned} \quad (6.3.19)$$

описывает рассеяние, происходящее без переворота атомных спинов, но с испусканием и поглощением некоторого числа фононов. От ядерного неупругого рассеяния оно отличается (кроме тривиального изменения амплитуд рассеяния) наличием магнитных формфакторов, возникающих из-за того, что рассеяние происходит не на ядрах, а на электронных оболочках, и более сложным характером интерференции волн, рассеянных различными атомами. Зависимость подынтегрального выражения от времени, определяющая спектр нейтронов, рассеянных некогерентно, такая же, как в случае ядерного рассеяния.

Третий член в формуле (6.3.17)

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma_{ei}}{d\Omega dE_1} &= (r_e\gamma)^2 \frac{k}{k_0} \sum_{i,j} F_i(\vec{q}) \exp(-W_i) F_j(\vec{q}) \exp(-W_j) \times \\ &\times \exp(i\vec{q}(\rho_i - \rho_j)) \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) \frac{1}{2\pi\hbar} \int dt \cdot \exp(-i\omega t) \\ &\times \left\{ \langle S_{i\alpha}(0) \rangle \langle S_{j\beta}(t) \rangle - \langle S_{i\alpha} \rangle \langle S_{j\beta} \rangle \right\} \end{aligned} \quad (6.3.20)$$

описывает рассеяние, происходящее без изменения состояния решетки, но с изменением спинового состояния атомов. В случае ферромагнетика спиновые состояния рассеивателя (начальное и конечное) характеризуются с помощью амплитуд спиновых волн, аналогичных волнам смещений атомов при колебании решетки. Как и колебательные волны, спиновые волны квантуются, и кванты их носят название *магнонов*. Таким образом, (6.3.20) описывает сечение рассеяния с испусканием и поглощением магнонов.

Наконец, четвертый член

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma_{ii}}{d\Omega dE} &= (r_e\gamma)^2 \frac{k}{k_0} \sum_{i,j} F_i(\vec{q}) F_j(\vec{q}) \frac{1}{2\pi\hbar} \times \\ &\times \int dt \cdot \exp(-i\omega t) \left\{ \langle \exp(i\vec{q}\vec{R}_i(0)) \exp(-i\vec{q}\vec{R}_j(t)) \rangle - \langle \exp(i\vec{q}\vec{R}_i) \rangle \langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_j) \rangle \right\} \times \\ &\times \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) \left\{ \langle S_{i\alpha}(0) S_{j\beta}(t) \rangle - \langle S_{i\alpha} \rangle \langle S_{j\beta} \rangle \right\} \end{aligned} \quad (6.3.21)$$

описывает сечение рассеяния, при котором испускаются и поглощаются и фононы, и магноны.

При рассеянии на парамагнитном веществе, в котором спины атомов не взаимодействуют, выделение асимптотической части из спиновой корреляционной функции лишено смысла, так как в этом случае  $S_{j\beta}(t) = S_{j\beta}(0)$  и спиновая корреляционная функция не зависит от времени, т.е. все рассеяние является в отношении спинов упругим. В результате усреднения по спинам атомов получаем

$$\begin{aligned} \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) \langle S_{i\alpha}(0) S_{j\beta}(0) \rangle &= \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) \delta_{ij} \delta_{\alpha\beta} \frac{1}{3} \times \\ &\times S_i(S_i+1) = \frac{2}{3} S_i(S_i+1) \delta_{ij} \end{aligned} \quad (6.3.22)$$

Благодаря наличию  $\delta_{ij}$  в (6.3.22) недиагональные члены в выражении (6.3.14) исчезают, т.е. магнитное рассеяние на парамагнетике является полностью некогерентным и отличается от некогерентного ядерного рассеяния только наличием магнитного форм-фактора и величиной амплитуды рассеяния. В частности, для упругого рассеяния получаем

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = (r_e\gamma)^2 \sum_i (F_i(\vec{q}))^2 \exp(-2W_i) \frac{2}{3} S_i(S_i+1). \quad (6.3.23)$$

При рассеянии на ферромагнитном веществе деление на упругое и неупругое в отношении спинов рассеяние весьма существенно, так как благодаря обменному взаимодействию спины имеют преимущественную ориентацию в направлении спонтанной намагниченности и переориентация спина связана с затратой энергии. Обозначим через  $\vec{m}$  единичный вектор в направлении спонтанной намагниченности. Среднюю проекцию спина  $i$ -го атома на направление спонтанной намагниченности обозначим через  $M_{Si}$ . Направляя ось  $z$  по  $\vec{m}$ , находим

$$\langle S_{ix} \rangle = \langle S_{iy} \rangle = 0, \quad \langle S_{iz} \rangle = M_{Si}. \quad (6.3.24)$$

Отсюда

$$\sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) \langle S_{i\alpha} \rangle \langle S_{j\beta} \rangle = (1 - \hat{q}^2) M_{Si} M_{Sj} = [1 - (\hat{q}\vec{m})^2] M_{Si} M_{Sj}. \quad (6.3.25)$$

Для упругого рассеяния по формуле (6.3.18), свертывая двойную сумму, находим

$$\frac{d\sigma_{ee}}{d\Omega} = (r_e\gamma)^2 [1 - (\hat{q}\vec{m})^2] \left| \sum_i (F_i(\vec{q}))^2 \exp(-W_i) \exp(i\vec{q}\rho_i) M_{Si} \right|^2. \quad (6.3.26)$$

Благодаря трансляционной симметрии кристалла при суммировании по  $i$  получаем ряд  $\delta$ -функций, т.е. брэгговское дифракционное рассеяние, как и в § 5.1.

Так как амплитуда волны, рассеянной  $i$ -м атомом, зависит от проекции его спина на направление  $\vec{m}$ , по дифракционному магнитному рассеянию можно судить о магнитной структуре вещества. Характерной особенностью рассеяния на ферромагнетике является множитель  $[1 - (\hat{q}\vec{m})^2]$ .

При рассеянии на сложных магнетиках (таких, как антиферромагнетики или ферриты) дифракционная картина усложняется из-за различной ориентации атомных спинов. Для таких веществ магнитное рассеяние нейтронов является особенно ценным, так как это единственный способ непосредственного экспериментального исследования магнитной структуры.

Интересное явление – магнитное критическое рассеяние нейтронов – возникает, когда температура ферромагнетика или антиферромагнетика близка к точке фазового перехода в парамагнитное состояние. Как и критическое рассеяние нейтронов в плотном газе, магнитное критическое рассеяние объясняется наличием больших спонтанных флуктуаций, в данном случае – флуктуаций намагниченности.

## §6.4. Сильнокоррелированные электронные системы

### 6.4.1. Сильные электронные корреляции и рассеяние нейтронов

В сильнокоррелированных электронных системах потенциальная энергия взаимодействующих электронов сравнима (или больше) с их кинетической энергией. В результате, например, в металлических соединениях, содержащих ионы с незаполненными  $f$ - или  $d$ - электронными слоями имеются локализованные магнитные моменты, которые и определяют характер магнитных состояний. В общем случае в системах с сильными электронными корреляциями имеется три вида взаимодействий: *кристаллические электрические поля* (КЭП), *межионное обменное взаимодействие* (в металлах – это взаимодействие Рудермана-Киттеля-Касуйи-Иосиды, РККИ) и *гибридизация локализованных  $f$ - или  $d$ - электронов с электронами проводимости ( $s$ - $f$  или  $s$ - $d$  взаимодействие)*. Эти взаимодействия и их конкуренция приводят к разным возможностям основного состояния, среди которых парамагнитное, магнитоупорядоченное, диэлектрическое, сверхпроводящее. Соответственно, появляются разнообразные возможности фазовых переходов. Среди современных проблем физики сильнокоррелированных систем следует отметить проблемы систем с тяжелыми фермионами, переменной валентностью, фазовые переходы металл – неметалл, магнетик – немагнетик в валентно нестабильных системах (Кондо-изоляторах).



Особую роль в исследовании всего многообразия свойств сильнокоррелированных электронных систем сыграли методы рассеяния нейтронов [Алексеев, 2017]. Исходной задачей является постановка эксперимента по неупругому рассеянию нейтронов на системе атомов с незаполненными электронными оболочками (конкретно для  $f$ -электронов) и локализованным магнитным моментом. Выпишем необходимые формулы. Дважды дифференциальное сечение рассеяния неполяризованных нейтронов в дипольном приближении согласно общей теории имеет вид:

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{1}{2\pi} \left( \frac{\gamma r_e}{\mu_B} \right) N \frac{k_1}{k_0} \chi''(\vec{q}, E, T) \frac{1}{1 - \exp[-E/k_B T]}, \quad (6.4.1)$$

где  $\gamma = -1,91$  – гиромангнитное отношение для нейтрона,  $r_e = e^2/(m_e c^2)$  – классический радиус электрона,  $\mu_B = e\hbar/(2m_e c)$  – магнетон Бора,  $\vec{k}_0, \vec{k}_1$  – волновые векторы нейтрона до и после рассеяния соответственно,  $\vec{q} = \vec{k}_0 - \vec{k}_1$  – импульс, переданный нейтроном образцу,  $E$  – энергия, переданная нейтроном образцу,  $\chi''(\vec{q}, E, T) \equiv \text{Im}(\chi(\vec{q}, E, T))$  – мнимая часть динамической магнитной восприимчивости (на один атом),  $k_B$  – постоянная Больцмана.

В соответствии с соотношениями Крамерса-Кронига  $\chi''(\vec{q}, E, T)$  можно выразить через  $\chi'(\vec{q}, 0, T) \equiv \text{Re}(\chi(\vec{q}, E, T))$ :

$$\chi''(\vec{q}, E, T) = E\pi \sum_{n,m} \chi'_{nm}(\vec{q}, 0, T) P_{nm}(E, T), \quad (6.4.2)$$

где  $\chi'_{nm}(\vec{q}, 0, T)$  – восприимчивость Ван-Флека, соответствующая переходу между состояниями  $|n\rangle$  и  $|m\rangle$  (при  $n = m$  – восприимчивость Кюри для состояния  $|n\rangle$ )  $\sum_{n,m} \chi'_{nm}(\vec{q}, 0, T) = \chi'(\vec{q}, 0, T)$ ; каждая из функций  $P_{nm}(E, T)$  имеет форму пика с максимумом в точке  $E = E_m - E_n$ , где  $E_n$  и  $E_m$  – энергия атома в состояниях  $|n\rangle$  и  $|m\rangle$  соответственно, при этом

$$\int_{-\infty}^{+\infty} P_{nm}(E, T) dE = 1. \quad (6.4.3)$$

В отсутствие взаимодействия между атомами зависимость  $\chi'(\vec{q}, 0, T)$  от  $\vec{q}$  описывается одноионным магнитодипольным формфактором  $F(\vec{q})$ :

$$\chi'(\vec{q}, 0, T) = (F(\vec{q}))^2 \chi'(0, 0, T) \equiv (F(\vec{q}))^2 \chi_{st}(T), \quad (6.4.4)$$

где  $\chi_{st}$  – статическая магнитная восприимчивость, измеряемая в классической магнитометрии.

Таким образом,

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{1}{2\pi} \left( \frac{\gamma r_e}{\mu_B} \right) \frac{k_1}{k_0} (F(\vec{q}))^2 \left( \sum_{n,m} \chi'_{nm}(0,0,T) P_{nm}(E,T) \right) \frac{E}{1 - \exp[-E/k_B T]}, \quad (6.4.5)$$

Если для простоты предположить, что  $P_{nm}(E,T)$  описываются набором  $\delta$ -функций, то выражение (6.4.5) может быть преобразовано в следующее:

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = (\gamma r_e)^2 \frac{k_1}{k_0} (F(\vec{q}))^2 N \sum_{n,m} \rho_n \left| \langle m | \hat{M}_\perp | n \rangle \right|^2 \delta(E - (E_m - E_n)), \quad (6.4.6)$$

где  $\rho_n$  – вероятность нахождения атома при данной температуре в состоянии  $|n\rangle$ ,

$$\rho_n = \exp\left[-\frac{E_n}{k_B T}\right] \left[ \sum_i \exp\left(-\frac{E_i}{k_B T}\right) \right]^{-1},$$

$\hat{M}_\perp(\vec{q})$  – оператор намагниченности (§ 6.1):

$$\begin{aligned} \hat{M}_\perp(\vec{q}) &= \frac{1}{q^2} \left[ \hat{q} \times [\hat{M} \times \hat{q}] \right], \\ \hat{M} &= \frac{1}{2} (\hat{M}_L + \hat{M}_S) \end{aligned} \quad (6.4.7)$$

Если состояния  $|n\rangle$  и  $|m\rangle$  принадлежат одному и тому же спин-орбитальному мультиплету, то оператор  $\hat{M}$  может быть выражен через полный момент  $f$ -электронной оболочки:

$$\hat{M} = \frac{1}{2} g_j \hat{J}, \quad (6.4.8)$$

где  $g_j$  – фактор Ланде.

$$g_j = 1 + \frac{J(J+1) - S(S-1) - L(L+1)}{2J(J+1)}.$$

Тогда выражение для дважды дифференциального сечения рассеяния (6.4.6) приобретает вид

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = (\gamma r_e)^2 \frac{k_1}{k_0} (F(\vec{q}))^2 N \sum_{n,m} \rho_n \left| \langle m | \hat{J}_\perp | n \rangle \right|^2 \delta(E - (E_m - E_n)). \quad (6.4.9)$$

Часто для описания нейтронных спектров используют также так называемую функцию рассеяния (или спектральную функцию рассеяния)  $S(\vec{q}, E)$ , которая определяется соотношением

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_1}{k_0} S(\vec{q}, E, T), \quad (6.4.10)$$

Удобство использования функции рассеяния вместо дважды дифференциального сечения рассеяния заключается в том, что эта функция полностью определяется спектральными свойствами рассеивающей системы, ее температурой, а также импульсом и энергией, полученными системой в

результате взаимодействия с нейтроном. Согласно (6.4.2), (6.4.6) и (6.4.9), функция  $S(\vec{q}, E)$  представляет собой совокупность пиков, энергетическое положение которых определяется энергией возможных магнитодипольных переходов. Вероятности этих переходов, а, следовательно, и интенсивность рассеяния пропорциональны квадрату модуля матричного элемента  $\hat{M}_\perp(\vec{q})$  и, таким образом, непосредственно зависят от вида волновых функций. То есть спектр неупругого рассеяния нейтронов содержит информацию как об энергии, так и о волновых функциях состояний  $f$ -электронов.

Обычно экспериментальные спектры для  $f$ -состояний, возникших в результате расщепления основного спин-орбитального мультиплетта в КЭП, интерпретируются на основе соотношений (6.4.5) или (6.4.9), в зависимости от релаксационных свойств магнитной подсистемы и роли кооперативных эффектов.

Следует отметить, что для спектральной функции  $S(\vec{q}, E, T)$ , во-первых, реализуется принцип детального равновесия, т.е. интеграл по энергии по всему спектру – величина постоянная. Из этого следует, что при  $T \rightarrow \infty$  спектральная часть, соответствующая положительной передаче энергии,  $E > 0$ , при рассеянии (нейтрон теряет энергию), имеет интенсивность, равную интенсивности части с отрицательной передачей энергии (нейтрон приобретает энергию),  $E < 0$ , а при  $T \rightarrow 0$  вся интенсивность рассеяния сосредоточена только в части с  $E > 0$ . Во-вторых, этот интеграл (конечно, с учетом упругого и квазиупругого магнитного рассеяния), будучи приведенным к  $q = 0$  и проинтегрированным по телесному углу, равен полному магнитному сечению атома, определяемому величиной квадрата магнитного момента  $M^2$  как

$$\sigma_{mag} = (0,917) \left[ \frac{2}{3} M^2 \right] = (0,917) \left[ \frac{2}{3} (g_j)^2 J(J-1) \right].$$

Количественно эту связь можно охарактеризовать следующим образом: магнитному моменту  $M^2 \approx (1.3\mu_B)$  соответствует сечение рассеяния  $\sigma_{mag} \approx 1$  бн. Отметим, что характерные величины магнитных моментов основных мультиплеттов атомов приходятся на диапазон  $(1-10)\mu_B$ , т.е. характерные величины магнитных сечений близки к сечениям ядерного рассеяния. Это позволяет использовать для нейтронной спектроскопии  $f$ -электронных возбуждений ту же экспериментальную технику, что и для спектроскопии атомных колебаний (фононов).

#### 6.4.2. Кристаллические электрические поля в магнитных материалах

Самую большую группу магнитных веществ составляют соединения редкоземельных элементов, образующих переходную группу таблицы Менделеева с постепенно заполняющейся  $4-f$  электронной оболочкой. Для большинства редкоземельных элементов  $4-f$  оболочка расположена глубоко

внутри атома.  $4f$ -электроны экранируются  $5s$ - и  $5p$ -электронами и в результате магнитный момент атома сильно локализован. Влияние кристаллического окружения, кристаллического электрического поля (КЭП), на  $4f$ -электроны по своему действию эквивалентно внешнему электрическому полю. Это электрическое поле образуется зарядовым распределением вблизи рассматриваемого иона, которое зависит, с одной стороны, от зарядового состояния лиганда, и с другой стороны, от кристаллической симметрии. Под влиянием электрического поля снимается вырождение по  $M_J$  энергетических состояний  $4f$ -электронов свободного иона (частный случай эффекта Штарка), что приводит к возникновению так называемых «уровней кристаллического поля».

Типичное расщепление электронных мультиплетов в металлических редкоземельных соединениях порядка 20 мэВ. Это соответствует температуре ~220 К. Расстояние уровней кристаллического поля друг от друга составляет приблизительно 5,5 мэВ, что в температурных единицах соответствует 60 К. По сравнению с взаимодействиями электронов между собой и с атомным ядром в свободном ионе ( $>1$  эВ) КЭП можно рассматривать как возмущение. Появление тонкой структуры электронных мультиплетов оказывает влияние на физические свойства и процессы в твердом теле (эффекты кристаллического поля), которые заметно зависят от энергетических расстояний, характера уровней и их заселенности.

Исследование явлений кристаллического поля начало сильно развиваться в середине прошлого столетия с связи с развитием твердотельных мазеров и лазеров, принцип действия которых тесно связан со свойствами уровней КЭП. Прямые данные о положении уровней КЭП дает рассеяние нейтронов. Для непроводящих соединений этот метод является хорошим дополнением к оптическим исследованиям. Для металлических соединений он является практически единственным способом наблюдения уровней КЭП. Большой вклад в развитие этой области исследований внесли работы, выполненные учеными ОИЯИ и НИЦ «Курчатовский институт» [Андреефф и др., 1981; Алексеев, 2017].

Результаты нейтронных исследований дали хорошую основу для объяснения многих явлений, связанных с влиянием КЭП. Однако теоретикам до сих пор не удается выйти за рамки феноменологического описания потенциала КЭП в металле, поэтому эта задача до сих пор остается прерогативой экспериментальных исследований.

В феноменологической теории используется описание с помощью эквивалентных операторов. Эквивалентные операторы представляют собой формальные преобразования в целях облегчения расчетов. Потенциал кристаллического поля представляется в виде ряда по сферическим функциям. Задачей расчетов является определение собственных значений  $4f$ -электронов в кристаллическом поле, для чего необходимо определить матричные элементы с помощью  $4f$ -волновых функций. Угловая часть волновой функции характеризуется полным моментом количества движения и его проекцией. В

шаровых функциях, являющихся тензорными операторами, можно заменить координаты соответствующими компонентами оператора полного момента количества движения. Тем самым получаются эквивалентные операторы  $O_l^m$ , которые являются функциями только оператора момента количества движения и его компонент. При этом исходят из того, что можно ограничиться одним изолированным мультиплетом (например, основным мультиплетом) редкоземельного иона, и исследуют его расщепление в кристаллическом поле. Полный момент количества движения  $\vec{J}(\vec{J} = \vec{L} + \vec{S})$  рассматривается как хорошее квантовое число, и оператор гамильтониана кристаллического поля записывается в следующем виде [Lovesey, 1984]:

$$H_{\text{КЭП}} = \sum_{l=2,4,6} \sum_{m=0}^l B_l^m O_l^{m-} (J, J_+, J_-, J_z). \quad (6.4.11)$$

Параметры кристаллического поля  $B_l^m$  содержат информацию о кристаллическом поле следующим образом. Симметрию кристаллического поля определяет число отличных от нуля  $B_l^m$ . Чем выше симметрия кристаллического поля, тем меньше число отличных от нуля параметров кристаллического поля. Значения  $B_l^m$  определяют силу кристаллического поля. Относительные значения  $B_l^m$  между собой определяют вид расщепления мультиплета, т.е. порядок следования уровней кристаллического поля.

Ограничение суммирования по  $l$ ,  $l = 2, 4, 6$ , происходит из-за того, что рассматриваются только  $4f$ -электроны. Для иллюстрации зависимости числа слагаемых в операторе гамильтониана кристаллического поля от симметрии приведем операторы гамильтониана для кубической и гексагональной точечной симметрий:

$$\begin{aligned} H_{\text{КЭП, куб}} &= B_4^0 [O_4^0 + 5O_4^4] + B_6^0 [O_6^0 - 21O_6^4]; \\ H_{\text{КЭП, гекс}} &= B_2^0 O_2^0 + B_4^0 O_4^0 + B_6^0 O_6^0 + B_6^6 O_6^6. \end{aligned} \quad (6.4.12)$$

Обычно предполагается, что симметрия КЭП соответствует точечной кристаллографической симметрии редкоземельного иона в кристалле. Это предположение следует из представлений об эффективных точечных зарядах и позволяет значительно сократить число параметров  $B_l^m$  в выражении (6.4.11). В рамках такого подхода  $B_l^m$  – эмпирические параметры, которые определяются из спектров неупругого магнитного рассеяния нейтронов. Из выражения для дважды дифференциального сечения рассеяния (6.4.9) следует, что неупругое рассеяние нейтронов дает прямую информацию о тонкой структуре  $4f$ -электронов в КЭП в виде пиков, энергия которых соответствует расстоянию между уровнями КЭП, а интенсивность зависит от величины заселенности, определяемой статистикой

Больцмана, и коэффициентов волновых функций уровней, между которыми происходит переход.

Интенсивность отдельных пиков пропорциональна матричному элементу, который в случае поликристаллических образцов дается следующим выражением (дипольное приближение):

$$|\langle n | J_{\perp} | m \rangle|^2 = (1/3) \left\{ |\langle n | J_{+} | m \rangle|^2 + |\langle n | J_{-} | m \rangle|^2 + 2 |\langle n | J_{z} | m \rangle|^2 \right\} .$$

Сравнивая расстояния между положениями уровней кристаллического поля и вероятности переходов, рассчитанных с помощью теории, с положениями пиков и их интенсивностями в экспериментальном спектре неупруго рассеянных нейтронов, можно определить набор параметров кристаллического поля для исследуемого вещества. До тех пор пока полуширины пиков  $\gamma_{nm}$  остаются малыми (1–2 мэВ) и в спектре наблюдаются хорошо разрешенные пики, неупругое рассеяние нейтронов является очень чувствительным методом для определения параметров кристаллического поля.

Для иллюстрации на рис. 6.4.1 приведены спектры неупругого рассеяния нейтронов в соединении  $\text{PrV}_2$ , полученные в пионерских экспериментах группы Берджино (Birgeneau) в 1970 г. [Андреефф и др., 1981].

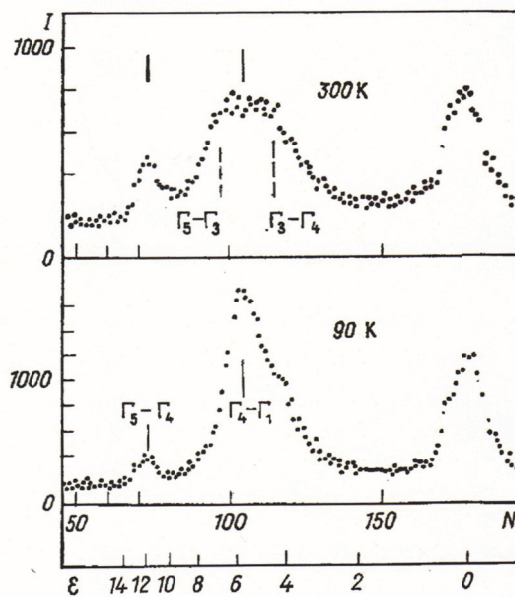


Рис. 6.4.1. Спектр нейтронов по времени пролета в  $\text{PrV}_2$ ,  $N$  – номер канала регистрации [Андреефф и др., 1981].

На рисунке обозначены переходы между расщепленными в КЭП уровнями  $J$ -мультиплета.

### 6.4.3. Коллективные возбуждения

Кроме взаимодействия с КЭП редкоземельные ионы испытывают целый ряд других взаимодействий. Прежде всего, это магнитоупругое взаимодействие, которое обусловлено колебаниями ионов в кристаллической решетке. Разлагая потенциал КЭП в ряд по деформациям решетки, можно получить следующий гамильтониан [Аксенов и др., 1982]:

$$H^i = H_{\text{КЭП}}^0(\vec{J}_i) + W_1 \sum_{\vec{q}\mu} A_{\vec{q}\mu} V_1(\vec{J}_i; \vec{q}\mu) \exp(i\vec{q}\vec{R}_i) + \\ + W_2 \sum_{\vec{q}\mu} A_{\vec{q}\mu} A_{\vec{q}'\mu'}^+ V_2(\vec{J}_i; \vec{q}\mu, \vec{q}'\mu') \exp(i(\vec{q} - \vec{q}')\vec{R}_i) \quad (6.4.13)$$

Член нулевого порядка  $H_{\text{КЭП}}^0(\vec{J}_i)$  является гамильтонианом КЭП типа (6.4.11) для жесткой решетки. Второй и третий члены в (6.4.13) описывают магнитоупругое взаимодействие.  $V_1$  и  $V_2$  – некоторые функции от компонент оператора  $\vec{J}_i$ , конкретный вид которых зависит от симметрии магнитоупругой связи. Операторы  $A_{\vec{q}\mu}$  выражаются через операторы рождения и уничтожения фононов:  $2A_{\vec{q}\mu} = a_{\vec{q}\mu} + a_{\vec{q}\mu}^+$ . Для описания фононов обычно достаточным оказывается гармоническое приближение.

Следующее важное взаимодействие обусловлено наличием электронов проводимости. В редкоземельном металле с регулярной кристаллической структурой  $5d$ - и  $6s$ - валентные электроны обобществляются и образуют электронный газ проводимости.  $4f$ -электроны расположены внутри ионного ядра и экранированы внешними  $5s$ - и  $6p$ - электронами. Тем не менее, кроме взаимодействия с КЭП они испытывают и другие взаимодействия, ведущее из которых – обменное. В простейшем виде это взаимодействие, так называемый  $s$ - $f$  обмен, записывается в виде

$$H_{s-f} = \sum_i I_{s-f} \vec{J}_i \vec{\sigma}_i, \quad (6.4.14)$$

где  $\vec{\sigma}_i$  – спин электрона проводимости. Это взаимодействие играет решающую роль для магнетизма редкоземельных металлов, так как приводит к эффективному (непрямому) обмену между спинами  $4f$ -электронов:

$$H_M = \sum_{ij} I_{ij} \vec{J}_i \vec{J}_j. \quad (6.4.15)$$

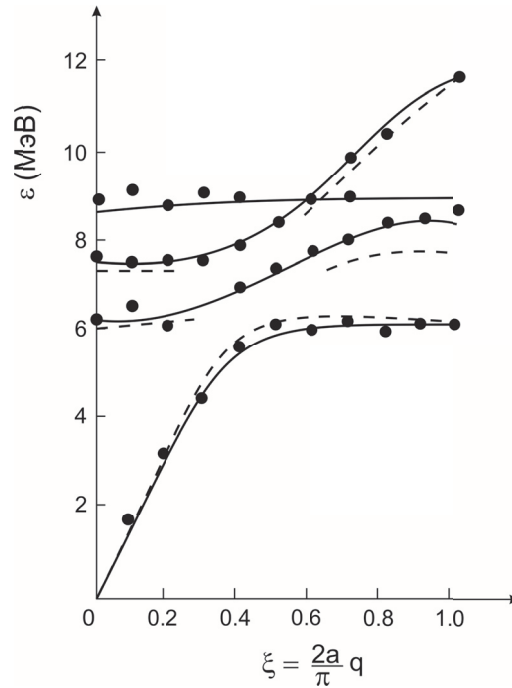
Величина обменного интеграла в редкоземельных соединениях соответствует температурам от десятков до сотен градусов К.

Возможны и другие эффективные взаимодействия между редкоземельными ионами. Так, квадрупольное кулоновское взаимодействие и взаимодействие с фононами (6.4.13) приводят в непрямому квадруполь-квадрупольному взаимодействию, которое в случае, например, кубической решетки имеет вид

$$H_Q = \frac{1}{2} \sum_{ij} K_{ij}(\alpha d) O_{\alpha d}^n(i) O_{\alpha d}^n(j), \quad (6.4.16)$$

где  $O_{\alpha d}^n(i)$  – тензорные операторы кубической симметрии ( $\alpha$  – номер представления,  $d$  – размерность,  $n$  – степень вырождения).

Магнитоупругое взаимодействие может приводить к гибридизации магнитных и фононных возбуждений в кристалле. Наиболее четко возникновение таких связанных магнитоупругих возбуждений проявилось при исследовании соединения  $\text{PrAl}_2$  методом неупругого рассеяния нейтронов при температуре 4,4 К, проведенного на реакторе ИБР-30 в ЛНФ ОИЯИ. Результаты этого эксперимента показаны на рис. 6.4.2 точками.  $\text{PrAl}_2$  имеет кубическую структуру фазы Лавеса типа  $\text{MgCu}_2$  (C15). Основное состояние – немагнитный дублет ( $\Gamma_3$ ). Первое возбужденное состояние (триплет  $\Gamma_4$ ) отдалено от основного энергией  $\Delta = 2,36$  мэВ.  $\text{PrAl}_2$  упорядочивается ферромагнитно при  $T_c = 32$  К. В случае немагнитного основного состояния магнитные возбуждения имеют другую природу, чем обычные спиновые волны. В этом случае возбуждения обусловлены одноионными переходами с основного на возбужденные уровни КЭП и получили название магнитных экситонов. Магнитный обмен (6.4.15) приводит к дисперсии магнитных экситонов.



**Рис. 6.4.2.** Дисперсионные кривые для  $\text{PrAl}_2$  в направлении  $(00\xi)$  при  $T = 4,2$  К. Точки – экспериментальные значения. Сплошная линия – расчет [Аксенов, и др., 1982].



Гамильтониан системы в общем случае имеет следующий вид:

$$H = \sum_i H_{\text{КЭП}}^0(\vec{J}_i) + H_M + H_\Phi + H_{\text{МУ}}. \quad (6.4.17)$$

Уравнение Дайсона для однофононной функции Грина в этом случае:

$$D_q(\omega) = \left\{ [D_q^0(\omega)]^{-1} - W_1 \sum_{mn} G_{mn}(q, \omega) \right\}^{-1}, \quad (6.4.18)$$

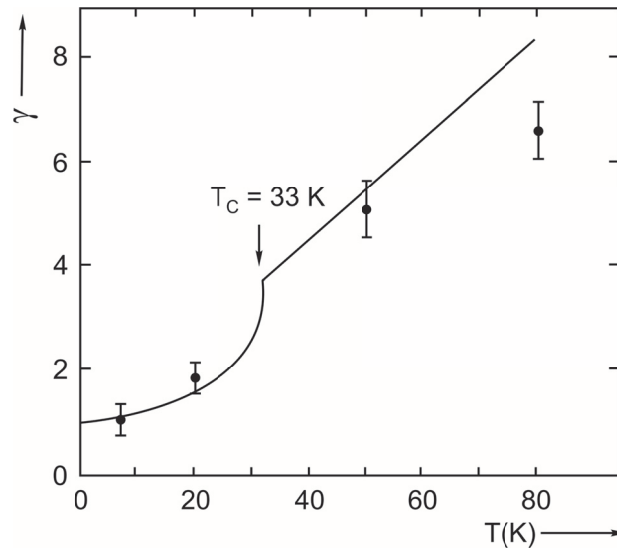
где  $D_q^0(\omega)$  – функция Грина фононов, а  $G_{mn}(q, \omega)$  – функция Грина магнитных возбуждений без учета магнитоупругого взаимодействия. Полюса этих функций Грина определяют энергию соответствующих возбуждений. Из выражения (6.4.18) видно, что при учете магнитоупругого взаимодействия эти возбуждения будут перемешиваться.

В парамагнитной фазе в отсутствие внешнего магнитного поля фонон и магнитные дипольные возбуждения не смешиваются. Однако, как следует из теории, возможна гибридизация с одноионными квадрупольными возбуждениями (квадрупольными экситонами). Действительно, в парафазе функция Грина  $G_{mn}(q, \omega)$  описывает квадрупольные экситоны и имеет вид

$$G_{mn}(q, \omega) = \frac{E_{mn} V_{mn}^1 V_{nm}^1 (f_m - f_n)}{\omega^2 - E_{mn}^2}, \quad (6.4.19)$$

где  $E_{mn}$  – энергия переходов между уровнями КЭП,  $f_m$  – числа заполнения уровней.  $V_{mn}^1 = \langle m | V(\vec{J}_i, \vec{q}) | n \rangle$  – матричные элементы комбинаций компонент оператора полного момента  $\vec{J}_i$ , которые определяются видом магнитоупругого взаимодействия (6.4.13). Как видно из (6.4.18), (6.4.19), если матричные элементы не равны нулю, то возникает гибридизация фононов и квадрупольных экситонов. Такие связанные квадруполь-фононные возбуждения наблюдались с помощью неупругого рассеяния нейтронов в изоляторе  $\text{PrAlO}_3$ .

Ширины пиков нейтронного рассеяния дают важную информацию о природе сил взаимодействия в кристаллах. Обычно при низких температурах (10 – 80 К) в интерметаллических редкоземельных соединениях наблюдаются ширины 1,5 ÷ 3 мэВ. В кубических структурах фазы Лавеса, однако, они оказываются примерно в два раза большими, что, вообще говоря, осложняет однозначное определение параметров КЭП. При исследовании  $\text{PrAl}_2$  обнаружился еще один интересный эффект. Фазовый переход в ферромагнитное состояние сопровождался резким уменьшением ширины пиков, как показано на рис. 6.6. Таким образом, возникают два вопроса. Во-первых, в чем причина необычно широких пиков в парафазе? И, во-вторых, почему ширина пиков резко меняется при переходе в феррофазу в  $\text{PrAl}_2$ ?



**Рис. 6.4.3.** Зависимость ширины линии магнитных возбуждений в  $\text{PrAl}_2$  от температуры. Точки – экспериментальные данные. Сплошная линия – расчет.  $\gamma$  – в единицах мэВ.

Сравнение теоретических расчетов с экспериментальными данными показывает, что температурная зависимость ширины обусловлена прямым  $s$ - $f$ -обменом (6.4.3). Скачок в ширине при переходе в феррофазу возникает в результате полного изменения схемы уровней КЭП и изменения заселенности этих уровней. Ширины линий магнитных экситонов определяются величиной расщепления уровней  $\Delta$ , которая резко меняется при фазовом переходе.

#### Рекомендуемая литература к главе 6

- Гуревич И.И., Тарасов Л.В. (1965), *Физика нейтронов низких энергий*, М.: Наука.
- Изюмов Ю.А., Найш В.Е., Озеров Р.П. (1981), *Нейтроннография магнетиков*, М.: Атомиздат.
- Изюмов Ю.А., Черноплеков Н.А. (1983), *Нейтронная спектроскопия*, М.: Энергоатомиздат.
- Малеев С.В. (2002), *УФН*, **172**, № 6, 617.
- Halpern O. and Johnson M.H. (1939), *Phys. Rev.*, **55**, 898.
- Lovesey S.W. (1984), *Theory of neutron scattering from condensed matter, vol.2, Polarization effects and magnetic scattering*, Oxford, Clarendon Press.
- Schwinger J. (1937), *Phys. Rev.*, **51**, 514.

## ГЛАВА 7. ПОЛЯРИЗОВАННЫЕ НЕЙТРОНЫ

Как мы видели в §6.3, при рассеянии неполяризованных нейтронов сечение рассеяния является суммой ядерного и магнитного вкладов. Однако намагниченность является вектором. Поэтому неполяризованные нейтроны при магнитном рассеянии не дают полной информации о распределении средней намагниченности в образце и ее флуктуациях. Ее могут дать поляризованные нейтроны.

Рассеяние поляризованных нейтронов имеет важнейшее значение в физике конденсированного вещества, особенно при изучении природы магнитных явлений. В наши дни практически все ведущие нейтронные центры оснащены оборудованием для работы с поляризованными нейтронами для исследований различных аспектов магнитных структур, магнитных возбуждений, разупорядоченных и частично упорядоченных систем, поверхности и межфазных границ магнитных материалов. Поляризованные нейтроны широко используются и в ядерной физике [Абов и др., 1966; Крупчицкий, 1985; Алфименков и Пикельнер, 1995; Весна и др., 2021], однако, эта тема выходит за рамки книги. Вместе с тем, методы производства поляризованных нейтронов, впервые примененные в ядерной физике, оказываются весьма эффективными в экспериментах по рассеянию (гл. 11).

В настоящей главе мы дадим основные понятия физики поляризованных нейтронов, что позволит начинающим экспериментаторам ориентироваться в этой перспективной области нейтронных исследований. Более подробные сведения содержатся в рекомендованной к главе литературе и цитированных по ходу изложения статьях.

### § 7.1. Спиновые состояния и вектор поляризации

Квантовые частицы, как следует из релятивистской теории Дирака, обладают собственным механическим и собственным магнитным моментами, не связанными с их движением в пространстве. Это явление называется *спином* [Ландау, Лифшиц, 2001, т. 3, гл. 8; Блохинцев, 2015, гл. 10]. Термин «спин» (to spin) отражает первоначальное представление об электроны, как о вращающемся волчке. Позже стало понятно, что речь идет о чисто квантовом свойстве, которое исчезает в пределе  $\hbar \rightarrow 0$  и которое поэтому, в принципе, не допускает классической интерпретации.

Для частиц, имеющих спин, волновая функция зависит не только от координат частиц (непрерывных переменных), но и от спиновой переменной (дискретной), которая указывает значение проекции спина на некоторое выделенное направление в пространстве и имеет определенное число дискретных значений. Таким образом, описание состояния такой частицы должно определять

как вероятности ее возможных положений в пространстве, так и вероятности возможных ориентаций ее спина.

### 7.1.1. Спиновые состояния

Все сказанное выше, естественно, относится и к нейтрону, имеющему спин  $s=1/2$  (см. гл. 1). Поэтому теперь мы можем сказать, что состояние нейтрона полностью описывается его волновым вектором  $\vec{k}$  ( $|\vec{k}|=2\pi/\lambda$ , где  $\lambda$  – длина волны нейтрона) и проекцией его спина  $s_z$  на какое-либо заданное направление  $\hat{z}$ . Проекция спина может принимать два значения:  $s_z = \pm 1/2$ . То есть, если, например,  $s_z = 1/2$ , то при измерении проекции спина на направление  $\hat{z}$  мы с достоверностью получим величину  $1/2$ . Но если будем измерять проекцию спина на какое-либо другое направление, то в результате получим величину меньшую  $1/2$ . В частности, при измерении проекции спина вдоль направлений  $\hat{x}$  и  $\hat{y}$ , перпендикулярных оси  $\hat{z}$ , получим нулевой результат. Это является следствием того, что, с точки зрения квантовой механики, спин нейтрона – это трехмерный векторный оператор  $\vec{s} = (1/2)\vec{\sigma}$ , где  $\vec{\sigma}$  – вектор Паули, компоненты которого имеют вид (6.1.3) и не коммутируют друг с другом и поэтому не могут быть измерены одновременно [Ландау и Лифшиц, 2001, т.3, гл. 8; Малеев, 1995].

Состояния нейтрона с  $s_z = \pm 1/2$  и волновым вектором  $\vec{k}$  описываются волновыми функциями:

$$\psi^+(\vec{r}) = \exp(i\vec{k}\vec{r}) \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{и} \quad \psi^-(\vec{r}) = \exp(-i\vec{k}\vec{r}) \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (7.1.1)$$

Матрицы Паули  $\sigma_x$  и  $\sigma_y$  переводят состояния с  $s_z = \pm 1/2$  в состояния  $s_z = \mp 1/2$  и поэтому среднее значение  $\langle \pm 1/2 | \sigma_{x,y} | \pm 1/2 \rangle = 0$ .

В общем случае спиновые состояния нейтрона можно представить в виде суперпозиции состояний  $s_z = \pm 1/2$ :

$$|\psi(\vec{r})\rangle = \psi^+(\vec{r}) |\chi^+\rangle + \psi^-(\vec{r}) |\chi^-\rangle = \begin{pmatrix} \psi^+ \\ \psi^- \end{pmatrix}, \quad (7.1.2)$$

то есть парой комплексных функций  $\psi^\pm(\vec{r}) = |\psi^\pm| \exp(i\varphi_\pm)$ , где «+» и «-» суть проекции на двухкомпонентные базисные вектора

$$|\chi^+\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{и} \quad |\chi^-\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (7.1.3)$$

Эти вектора, удовлетворяющие условиям ортонормировки

$$\langle \chi^+ | \chi^- \rangle = \langle \chi^- | \chi^+ \rangle = 0, \quad \langle \chi^+ | \chi^+ \rangle = \langle \chi^- | \chi^- \rangle = 1, \quad (7.1.4)$$

заполняют дискретное двумерное (2D) пространство спиновых состояний, а проекции  $\psi^\pm(\vec{r})$  имеют смысл амплитуд вероятностей нахождения частицы в одном из состояний «+» или «-». Четыре функции: амплитуды и фазы  $\chi^\pm$  зависят от выбора осей квантования, хотя вероятность найти частицу в любом из этих состояний  $\langle\psi|\psi\rangle = \sum_\alpha |\psi^\alpha|^2$  – скалярная величина, т.е. инвариант, не зависящий от системы координат. Двухкомпонентную величину (7.1.2) называют *спинором*.

В состоянии (7.1.3) средние значения компонент имеют вид:

$$\begin{aligned}\langle\psi|\sigma_z|\psi\rangle &= |\psi^+|^2 - |\psi^-|^2, \\ \langle\psi|\sigma_x|\psi\rangle &= \psi^+ \psi^- + \psi^- \psi^+, \\ \langle\psi|\sigma_y|\psi\rangle &= i(\psi^- \psi^+ - \psi^+ \psi^-).\end{aligned}\quad (7.1.5)$$

Учитывая условие нормировки:  $|\psi^+|^2 + |\psi^-|^2 = 1$ , легко проверить, что

$$(\langle\psi|\vec{\sigma}|\psi\rangle)^2 = (\langle\psi|\sigma_x|\psi\rangle)^2 + (\langle\psi|\sigma_y|\psi\rangle)^2 + (\langle\psi|\sigma_z|\psi\rangle)^2 = 1, \quad (7.1.6)$$

то есть в состоянии  $\psi$  средний квадрат вектора  $\vec{\sigma}$  равен единице. Это означает, что мы всегда можем выбрать такое направление оси квантования  $\hat{z}$ , что  $s_z = 1/2$ . Заметим, что в (7.1.6) приведен результат вычисления среднего квадрата вектора  $\vec{\sigma}$  в состоянии  $\psi$ . Величина  $\vec{\sigma}^2$  равна 3 [Ландау и Лифшиц, 2001, т.3, гл. 8].

Состояния, которые описываются волновой функцией и характеризуются определенными собственными значениями полной совокупности коммутирующих операторов, в квантовой механике называются *чистыми состояниями*. Для их получения надо сделать так называемое *полное измерение*. В нашем случае – образовать коллимированный и монохроматический пучок нейтронов, а также измерить проекцию спина на ось  $\vec{z}$ , то есть полностью его поляризовать.

В реальности нейтроны, выходящие из источника, не монохроматичны и не поляризованы, то есть, нет такого направления, проекция спина на которое была бы отлична от нуля при любом выборе оси квантования. Более того, даже после того, как нейтроны поляризуют, степень поляризации пучка всегда меньше единицы. Это означает, что среднее значение вектора Паули  $\vec{P} = \langle\vec{\sigma}\rangle$  по модулю меньше единицы:  $\vec{P}^2 < 1$ . Такие состояния называются *смешанными состояниями*. Им соответствует некогерентный набор волновых функций со случайными фазами.

### 7.1.2. Вектор поляризации

Прежде чем заниматься описанием поляризации нейтронов, рассмотрим важные для дальнейшего общие свойства вектора  $\vec{P} = \langle\vec{\sigma}\rangle$ . Вектор  $\vec{P}$  является классическим *аксиальным вектором* или *псевдовектором* и называется *вектором поляризации нейтронов*. Напомним, что все векторы разделяются на два класса в

зависимости от поведения при изменении знаков всех трех координат, то есть при замене  $(x, y, z) \rightarrow (-x, -y, -z)$ . Такое преобразование называется инверсией системы координат. Очевидно, что при инверсии радиус-вектор  $\vec{R} = (x, y, z)$  меняет знак. Все векторы, ведущие себя как  $\vec{R}$ , например, импульс  $\hbar\vec{k}$ , называются полярными векторами или просто векторами. Есть другой класс векторов, например, момент количества движения  $\vec{M} = \hbar[\vec{R} \times \vec{k}]$ . При инверсии оба вектора  $\vec{R}$  и  $\vec{k}$  изменяют знак, в результате знак момента  $\vec{M}$  не меняется. Такие векторы, не меняющие знак при инверсии, называются аксиальными или псевдо-векторами. Спин – это собственный момент количества движения нейтрона, и поэтому  $\vec{P}$  является *аксиальным вектором*.

Еще одно важное свойство  $\vec{P}$  – это его поведение при обращении времени, то есть при замене  $t \rightarrow -t$ . Очевидно, радиус-вектор  $\vec{R}$  при такой замене не меняется, а импульс меняет знак, так как меняется направление скорости. Отсюда мы заключаем, что момент импульса меняет знак при обращении времени или, как говорят, является  $t$ -нечетным вектором. Таким образом, мы приходим к выводу, что: вектор поляризации  $\vec{P} = \langle \vec{\sigma} \rangle$  является  $t$ -нечетным аксиальным вектором.

Это свойство  $\vec{P}$  будет неоднократно использоваться в дальнейшем. Дело в том, что сечение рассеяния, очевидно, не зависит от выбора системы координат и поэтому не может измениться при инверсии. Оно также не меняется при изменении знака времени. Поэтому сечение может зависеть от поляризации падающих нейтронов  $\vec{P}_0$ , если рассеивающая система в целом характеризуется каким-либо  $t$ -нечетным аксиальным вектором  $\vec{A}$ . Тогда в выражении для сечения появляется слагаемое билинейное по компонентам  $\vec{P}_0$  и  $\vec{A}$ :  $A_\alpha B_{\alpha\beta} P_{0\beta}$ , не меняющее знака при рассматриваемых преобразованиях. В то же время при рассеянии неполяризованных нейтронов возникает поляризация, пропорциональная вектору  $\vec{A}$ . В качестве примера вектора  $\vec{A}$  можно указать спонтанную намагниченность ферромагнетика  $\vec{M}$  ниже  $T_c$ . В дальнейшем будут рассмотрены и другие примеры.

Итак, мы видим, что поляризацию нейтронов нельзя описывать с помощью волновой функции. В квантовой механике для описания таких смешанных состояний развит аппарат матрицы плотности  $\rho$ . С помощью этой матрицы среднее значение любой физической величины вычисляется по правилу:

$$\langle A \rangle = \sum_{nm} \rho_{nm} A_{mn} = \sum_n (\rho A)_{nn} = \text{Tr}(\rho A), \quad (7.1.7)$$

где  $\rho_{nm}$  и  $A_{mn}$  – матричные элементы операторов  $\rho$  и  $A$  в произвольном базисе волновых функций. Сумма берется по всем возможным начальным и

промежуточным состояниям  $n$  и  $m$ . В частности, среднее значение единичного оператора всегда равно единице. Отсюда мы получаем условие нормировки:  $\text{Tr}\rho = 1$ .

Если частицы «производятся» источником, тогда измеряемая величина, такая как плотность частиц (или поток), находится с помощью усреднения величины  $\langle \psi | \psi \rangle$  по времени пересчета частиц. Для стационарного источника это усреднение обычно заменяется усреднением по статистике состояний источника. Тогда плотность числа частиц

$$\rho_0 = \overline{\langle \psi | \psi \rangle}^{\text{source}} = \overline{|\psi^+|^2 + |\psi^-|^2}^{\text{source}} = \text{Tr}\{\overline{|\psi\rangle\langle\psi|}^{\text{source}}\} = \text{Tr}\hat{\rho}, \quad (7.1.8)$$

выражается через сумму диагональных элементов матрицы плотности [Torgerverg, 2002]:

$$\rho = \overline{|\psi\rangle\langle\psi|}^{\text{source}} = \begin{pmatrix} \rho^{++} & \rho^{+-} \\ \rho^{-+} & \rho^{--} \end{pmatrix}, \quad (7.1.9)$$

где  $\rho^{\mu\nu} = \overline{\psi^\mu \psi^{\nu*}}^{\text{source}}$ ,  $\mu, \nu = +, -$ .

Четыре действительных элемента матрицы плотности образуют полный набор наблюдаемых величин взамен четырех начальных величин: двух амплитуд  $|\psi^\pm|$  и двух фаз  $\chi^\pm$ , характеризующих квантовые спиновые состояния. В то же время матрица плотности содержит также информацию и о статистических свойствах источника. Однако все же это неудобно, когда элементы матрицы зависят от конкретного выбора представления, определенного осями квантования или, другими словами, от системы координат.

Чтобы избежать этого неудобства, элементы матрицы (7.1.9) можно представить в более детальном виде, поскольку каждая  $2 \times 2$  матрица  $\rho^{\mu\nu}$  может быть разложена на четыре матрицы. В результате можно записать

$$\begin{pmatrix} \rho^{++} & \rho^{+-} \\ \rho^{-+} & \rho^{--} \end{pmatrix} = \frac{\rho_0}{2} \left\{ \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + P_x \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} + P_y \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} + P_z \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \right\}, \quad (7.1.10)$$

где три действительные величины

$$P_x = \{\rho^{+-} + \rho^{-+}\} / \rho_0 \quad (7.1.11)$$

$$P_y = \{\rho^{+-} - \rho^{-+}\} / \rho_0 \quad (7.1.12)$$

$$P_z = \{\rho^{++} - \rho^{--}\} / \rho_0 \quad (7.1.13)$$

обеспечивают альтернативную параметризацию матриц  $\rho^{\mu\nu}$ .

Эта параметризация действительно удобна, поскольку в правой части уравнения (7.1.10) стоят три матрицы Паули  $\sigma_x$ ,  $\sigma_y$ ,  $\sigma_z$  (7.1.1) и единичная матрица  $\hat{I}$ .

Эти матрицы взаимно ортогональны:  $\hat{\sigma}_\alpha \hat{\sigma}_\beta = 0$  при  $\alpha \neq \beta$  и  $\hat{\sigma}_\alpha \hat{\sigma}_\beta = 1$  при  $\alpha = \beta$ , то есть

$$\sigma_\alpha \sigma_\beta = \delta_{\alpha\beta} + i \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \sigma_\gamma, \quad (7.1.14)$$

где  $\{\alpha, \beta, \gamma\} = \{x, y, z\}$ ;  $\delta_{\alpha\beta}$  – символ Кронекера:  $\delta_{\alpha=\beta} = 1$ ,  $\delta_{\alpha \neq \beta} = 0$ ;  $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma} = -\varepsilon_{\beta\alpha\gamma} = -\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$  – тензор Леви-Чивита, полностью антисимметричный аксиальный тензор третьего ранга:  $\varepsilon_{\alpha \neq \beta \neq \gamma} = \pm 1$  и  $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma} = 0$  при других соотношениях  $\alpha, \beta, \gamma$ .

Благодаря этим свойствам три матрицы  $\sigma_\alpha$  можно рассматривать как проекции 3D псевдовектора  $\sigma$  в декартовых координатах. Уравнение (7.1.10), записанное в инвариантной векторной форме, не зависит от выбора системы координат:

$$\hat{\rho} = \frac{\rho_0}{2} \{ \hat{I} + P_x \hat{\sigma}_x + P_y \hat{\sigma}_y + P_z \hat{\sigma}_z \} = \frac{\rho_0}{2} \{ \hat{I} + (\vec{P} \vec{\sigma}) \}. \quad (7.1.15)$$

Аксиальный вектор поляризации  $\vec{P}$  можно записать в форме, определяемой матрицей плотности:

$$\vec{P} = \overline{\langle \psi | \vec{\sigma} | \psi \rangle}^{\text{source}} = \text{Tr} \{ \hat{\rho} \vec{\sigma} \} / \text{Tr} \hat{\rho}, \quad (7.1.16)$$

то есть как вектор среднего значения вектора  $\vec{\sigma}$ . Компоненты вектора  $\vec{P}$  с использованием (7.1.11) – (7.1.13) можно записать в виде

$$P_x = 2 \left\{ \overline{|\psi^+| |\psi^-| \cos \varphi} \right\} / \left\{ |\psi^+|^2 + |\psi^-|^2 \right\} \quad (7.1.17)$$

$$P_y = -2 \left\{ \overline{|\psi^+| |\psi^-| \sin \varphi} \right\} / \left\{ |\psi^+|^2 + |\psi^-|^2 \right\} \quad (7.1.18)$$

$$P_z = \left\{ \overline{|\psi^+|^2 - |\psi^-|^2} \right\} / \left\{ |\psi^+|^2 + |\psi^-|^2 \right\}, \quad (7.1.19)$$

где  $\varphi = \varphi^+ - \varphi^-$  – сдвиг фазы. Если он абсолютно хаотичен и его значения неконтролируемы для разных частиц, тогда  $\overline{\cos \varphi} = \overline{\sin \varphi} = 0$ ,  $P_x = P_y = 0$  и матрица  $\hat{\rho}$  диагональна. Если в то же время  $\rho^{++} \neq \rho^{--}$ , то  $P_z \neq 0$  и матрица плотности имеет поляризацию вдоль оси  $z$ . В случае  $P_z = 0$ , но  $P_x \neq 0$ ,  $P_y \neq 0$ , поляризация расположена в базисной плоскости и проекции могут быть, а могут и не быть скоррелированы. При идеальной фазовой корреляции  $\overline{\cos \varphi} = 1$ , тогда  $\overline{\sin \varphi} = 0$  и наоборот. Из (7.1.17) – (7.1.19) следует, как уже отмечалось выше, что в общем случае  $|\vec{P}| \leq 1$ .

Таким образом, выражение (7.1.15) действительно является общим представлением для матрицы плотности, описывающей спиновое состояние



частиц с  $s=1/2$ . Из формул для матриц Паули следует, что любое их произведение можно свести к сумме постоянной и линейной комбинации матриц  $\sigma_\alpha$ . После этого достаточно заменить  $\sigma_\alpha$  на  $P_\alpha$ . Это будет эквивалентно использованию формул (7.1.15) – (7.1.19). Для практических вычислений, связанных с поляризованными нейтронами, такой процедуры вполне достаточно. Это следствие очень простой алгебры матриц Паули. В более сложных случаях без матрицы плотности не обойтись. Отметим еще, что в силу указанных свойств матриц Паули, сечение рассеяния может зависеть только от  $\vec{P} = \langle \vec{\sigma} \rangle$ , но не содержит вклада от более высоких степеней  $\vec{\sigma}$ . Для рассеяния частиц со спином  $I > 1/2$  эти, очевидно, не так.

## § 7.2. Ларморова прецессия вектора поляризации

Взаимодействие нейтрона с магнитным полем атома имеет вид (6.1.6). Энергию магнитного поля  $-\vec{\mu}_n \vec{B}(\vec{r})$  в точке нахождения нейтрона  $\vec{r}$  называют зеемановской. Оператор магнитного момента нейтрона  $\vec{\mu}_n$  связан с его спином соотношением

$$\vec{\mu}_n = \mu_n \vec{\sigma}, \quad (7.2.1)$$

где  $\mu_n$  – магнитный момент нейтрона.

В магнитных полях, не превышающих нескольких тесла, зеемановская энергия электрона меньше или порядка  $1 K \cong 0.1$  мэВ. Поэтому зеемановская энергия нейтрона в таких полях ничтожна по сравнению с его кинетической энергией, если не рассматривать случай ультрахолодных нейтронов. В результате, с хорошей точностью движение спина нейтрона можно рассматривать отдельно от его орбитального движения. Это приближение является общепринятым в физике магнитных явлений. Однако не надо забывать, что на любое приближение есть свои ограничения. Отметим два случая, когда наше рассмотрение требует изменений. Первый – это рассеяние при скользящем падении. В этом случае зеемановская энергия оказывается одного порядка с ядерным потенциалом. Второй случай – это малоугловое рассеяние на крупномасштабных магнитных неоднородностях.

В рассматриваемом приближении нейтрон движется по прямой  $\vec{r} = \vec{r}_0 + \vec{v}t$ , где  $\vec{v}$  – скорость нейтрона и, таким образом, поле  $\vec{B}(\vec{r})$  является функцией времени.

Впервые ларморову прецессию нейтрона в магнитном поле рассмотрели Халперн и Холштейн [Halpern and Holstein, 1941] при изучении прохождения нейтронов сквозь ферромагнетик. Исходным при рассмотрении изменения направления спина уравнением было псевдоклассическое уравнение движения для оператора спина  $\vec{\sigma}$ . Нас интересует экспериментально наблюдаемая величина

– поляризация пучка нейтронов  $\vec{P}$ . Поэтому будем рассматривать поведение в зависимости от  $t$  вектора поляризации  $\vec{P} = \langle \vec{\sigma} \rangle$ , а не спинора  $\psi$  [Малеев, 1995]. Исходным является уравнение типа уравнения Ландау-Лифшица для вектора поляризации  $\vec{P}$

$$\frac{d\vec{P}}{dt} = \frac{2\mu_n}{\pi} [\vec{B}(\vec{r}) \times \vec{P}]. \quad (7.2.2)$$

Это уравнение устроено так, что длина вектора  $\vec{P}$  сохраняется, то есть является интегралом движения. Действительно, имеем:

$$\frac{d}{dt} \vec{P}^2 = 2\vec{P} \frac{d\vec{P}}{dt} = \frac{4\mu_n}{\hbar} \left( \vec{P} [\vec{B}(\vec{r}) \times \vec{P}] \right) = 0. \quad (7.2.3)$$

Здесь равенство нулю справа является следствием того, что векторное произведение перпендикулярно входящим в него векторам. Как уже отмечалось выше, нейтрон движется и его координата  $\vec{r}$  меняется по закону:  $\vec{r} = \vec{r}_0 + \vec{v}t$ . Таким образом, магнитное поле в (7.2.2) зависит от времени. Исключением является пространственно однородное поле. В нем вектор поляризации вращается вокруг поля с постоянной ларморовой частотой  $\omega_L = 2|\mu_n|B/\hbar$  [Ландау и Лифшиц, 2001, т. 2, § 45].

Выбирая направление магнитного поля за ось  $z$ , получаем следующие уравнения движения в компонентах:

$$\begin{aligned} \dot{P}_x &= -\omega_L P_y, \\ \dot{P}_y &= \omega_L P_x, \\ \dot{P}_z &= 0. \end{aligned} \quad (7.2.4)$$

Здесь  $\dot{P}_\alpha = dP_\alpha/dt$ . Введя циклические компоненты:

$$P_\pm = P_x \pm iP_y; \quad P_x = \frac{P_+ + P_-}{2}; \quad P_y = \frac{P_+ - P_-}{2i}, \quad (7.2.5)$$

из (7.2.4) получаем:

$$\dot{P}_\pm = \pm i\omega_L P_\pm. \quad (7.2.6)$$

Решение этих уравнений очевидно:

$$P_\pm = P_\pm^{(0)} e^{\pm i\omega_L t}. \quad (7.2.7)$$

Кроме того, в силу третьего уравнения (7.2.4)  $P_z = P_{z0}$  не зависит от времени. Из этих уравнений следует:

$$\begin{aligned} P_x &= P_\perp \cos(\omega_L t + \phi), \\ P_y &= P_\perp \sin(\omega_L t + \phi), \\ P_z &= P_{z0}. \end{aligned} \quad (7.2.8)$$

Здесь  $P_{\perp}$  и  $\phi$  связаны с  $P_{\pm 0}$  равенством  $P_{\pm 0} = P_{\perp} \exp(i\phi)$ . Кроме того  $P_{x0} = P_{\perp} \cos \phi$  и  $P_{y0} = P_{\perp} \sin \phi$ . Уравнения (7.2.7), (7.2.8) описывают ларморову прецессию вектора поляризации вокруг поля  $B$  (оси  $z$ ).

В начальный момент времени  $t=0$  система нейтрон + поле характеризуется двумя направлениями  $\vec{P}_0$  и  $\hat{b} = \vec{B}/B$ . Это позволяет ввести естественную систему координат с осями  $x$ ,  $y$  и  $z$ , направленными вдоль трех взаимно перпендикулярных векторов  $\vec{P}_{\perp} = \vec{P}_0 - (\hat{b}\vec{P}_0)\hat{b}$ ,  $[\hat{b} \times \vec{P}_0]$  и  $\hat{b}$ . В результате, (7.2.8) можно переписать в виде:

$$\begin{aligned} \vec{P}(t) &= \vec{P}_{\perp} \cos \omega_L t + [\hat{b} \times \vec{P}_0] \sin \omega_L t + (\vec{P}_0 \hat{b}) \hat{b} = \\ &= \vec{P}_0 \cos \omega_L t + [\hat{b} \times \vec{P}_0] \sin \omega_L t + (\vec{P}_0 \hat{b}) \hat{b} (1 - \cos \omega_L t). \end{aligned} \quad (7.2.9)$$

где  $\vec{P}_0$  – вектор поляризации в момент влета нейтрона в однородном поле,  $\hat{b} = \vec{B}/B$  – единичный вектор в направлении поля и  $\vec{P}_{\perp} = \vec{P}_0 - (\vec{P}_0 \hat{b}) \hat{b}$  – перпендикулярная полю составляющая вектора  $\vec{P}_0$ . Первые два слагаемых описывают вращение вектора  $\vec{P}$  вокруг поля, а последнее – проекцию  $\vec{P}$  на поле, которая остается постоянной. Математически строгое и более общее рассмотрение на основе уравнения Шредингера [Torengverg, 2002] в используемых в этом разделе приближениях подтверждает результат (7.2.9).

Рассмотрим формулу (7.2.9) как результат действия матрицы  $R(t)$  на вектор начальной поляризации  $\vec{P}_0$  на угол ларморовой прецессии  $\varphi_L = \omega_L t$  вокруг поля  $\vec{B}$ :

$$\vec{P}(t) = \hat{R}(t) \vec{P}_0. \quad (7.2.10)$$

Записывая (7.2.9) в произвольной системе координат, не связанной с  $\hat{b}$  и  $\vec{P}_0$ , для матрицы  $\hat{R}(t)$  находим:

$$\hat{R}(t) = \begin{pmatrix} \cos \varphi_L + 2\hat{b}_x^2 \sin^2 \frac{\varphi_L}{2}, & 2\hat{b}_x \hat{b}_y \sin^2 \frac{\varphi_L}{2} - \hat{b}_z \sin \varphi_L, & 2\hat{b}_z \hat{b}_y \sin^2 \frac{\varphi_L}{2} + \hat{b}_y \sin \varphi_L \\ 2\hat{b}_x \hat{b}_y \sin^2 \frac{\varphi_L}{2} + \hat{b}_z \sin \varphi_L, & \cos \varphi_L + 2\hat{b}_y^2 \sin^2 \frac{\varphi_L}{2}, & 2\hat{b}_y \hat{b}_z \sin^2 \frac{\varphi_L}{2} - \hat{b}_x \sin \varphi_L \\ 2\hat{b}_z \hat{b}_x \sin^2 \frac{\varphi_L}{2} - \hat{b}_y \sin \varphi_L, & 2\hat{b}_y \hat{b}_z \sin^2 \frac{\varphi_L}{2} + \hat{b}_x \sin \varphi_L, & \cos \varphi_L + 2\hat{b}_z^2 \sin^2 \frac{\varphi_L}{2} \end{pmatrix} \quad (7.2.11)$$

где мы воспользовались равенством  $1 - \cos \varphi_L = 2 \sin^2 \frac{\varphi_L}{2}$ .

Формулы (7.2.9), (7.2.11) позволяют сделать удобное обобщение. Допустим, мы имеем какое-то неоднородное в пространстве поле  $\vec{B}(\vec{r})$ . Решить задачу о повороте вектора поляризации в этом поле мы не умеем, а часто и не

можем, в принципе, из-за незнания точного вида  $\vec{B}(\vec{r})$ . Но, очевидно, что результат прохождения нейтрона через это поле сводится к повороту вектора  $\vec{P}$  вокруг некоторого эффективного направления  $\hat{b}_{eff}$  на некоторый угол  $\alpha_{eff}$ , и мы имеем формулы (7.2.9), (7.2.10) с заменой  $\hat{b}$  и  $\alpha$  на  $\hat{b}_{eff}$  и  $\alpha_{eff}$ . Такой подход удобен, в частности, в тех случаях, когда изменение величины поля и его направления невелики. Если поле  $\vec{B}$  периодически во времени  $\vec{B}(t+T) = \vec{B}(t)$ , матрица поворота, соответствующая  $n$  периодам поля, является  $n$ -степенью матрицы поворота, соответствующей одному периоду  $R(t+nT) = R^n(t)$ . Следует отметить, что точность такого описания, вообще говоря, не контролируема и поэтому им можно пользоваться только, если изменения направления и величины поля не велики.

### 7.2.1. Адиабатический и неадиабатический режимы

Значительно сложнее обстоит дело в случае меняющегося со временем поля  $\vec{B}(t)$ . Однако общие характеристики поведения  $\vec{P}(t)$  можно вывести в двух предельных случаях: 1) медленного или, как говорят, адиабатического изменения поля  $\vec{B}(t)$  и 2) быстрого или неадиабатического его изменения. Приведем качественный анализ для обоих случаев [Малеев, 1995].

Условие адиабатичности можно сформулировать следующим образом:

$$\bar{\omega}_L \tau \gg 1, \quad (7.2.12)$$

где  $\bar{\omega}_L$  – ларморова частота в среднем магнитном поле  $\bar{B}$ , а  $\tau$  – время, за которое поле изменяется на величину порядка  $\bar{B}$ . Для нейтрона, движущегося в поле со скоростью  $v$ , условие (7.2.12) можно переписать в виде:

$$\bar{\omega}_L \left( \frac{L_0}{v} \right) \gg 1, \quad (7.2.13)$$

где  $L_0$  – расстояние, на котором поле меняется на величину порядка  $\bar{B}$ .

Условие адиабатичности означает, что производная поля по времени  $d\vec{B}/dt$  является малой величиной и ею в первом приближении можно пренебречь.

В этом приближении сохраняется проекция вектора поляризации на направление поля  $\hat{b}(t) = \vec{B}(t)/|\vec{B}(t)|$ . Это означает, что проекция поляризации на направление поля не меняется по величине при адиабатически медленном повороте поля. Действительно, проекция поляризации на направление поля имеет вид скалярного произведения  $(\vec{P}\hat{b})$ . Дифференцируя по времени, получаем:

$$\frac{d}{dt}(\vec{P}\hat{b}) = \left( \vec{P} \frac{d\hat{b}}{dt} \right) + \left( \hat{b} \frac{d\vec{P}}{dt} \right) \cong 0. \quad (7.2.14)$$

В этом выражении второе слагаемое равно нулю в силу уравнения (7.2.2), а первое – в силу условия адиабатичности (7.2.12). Таким образом, поляризация адиабатически следует за полем.

Покажем теперь, что вектор поляризации вращается вокруг мгновенного направления поля с ларморовской частотой, соответствующей мгновенному значению поля. Дифференцируя уравнение (7.2.2) по времени, находим:

$$\begin{aligned} \frac{d^2 \vec{P}}{dt^2} &= -\frac{2\mu_n}{\pi} \left( \vec{B}(t) \times \frac{d\vec{P}}{dt} \right) - \frac{2\mu_n}{\hbar} \left( \frac{d\vec{B}}{dt} \times \vec{P} \right) = \\ &= \left( \frac{2\mu_n}{\hbar} \right)^2 \left[ \vec{B}(t) \times \left[ \vec{B}(t) \times \vec{P} \right] \right] - \frac{2\mu_n}{\hbar} \left[ \frac{d\vec{B}}{dt} \times \vec{P} \right]. \end{aligned} \quad (7.2.15)$$

Раскрывая двойное векторное произведение по формуле  $\vec{A} \times [\vec{B} \times \vec{C}] = \vec{B}(\vec{A} \cdot \vec{C}) - \vec{C}(\vec{A} \cdot \vec{B})$ , получаем:

$$\frac{d^2 \vec{P}}{dt^2} + \omega_L^2(t) \vec{P}_\perp = -\frac{2\mu_n}{\hbar} \left( \frac{d\vec{B}}{dt} \times \vec{P} \right), \quad (7.2.16)$$

где

$$\begin{aligned} \omega_L(t) &= \frac{2|\mu_n \vec{B}(t)|}{\hbar}, \\ \vec{P}_\perp &= \vec{P} - \hat{b}(t)(\hat{b}(t), \vec{P}). \end{aligned} \quad (7.2.17)$$

Как мы уже знаем,  $\vec{P}_\parallel = \hat{b}(\hat{b}\vec{P})$  адиабатически следует за полем и в нашем приближении ее вторая производная равна нулю. В этом же приближении надо отбросить и правую часть уравнения (7.2.16). В результате, получаем:

$$\frac{d^2 \vec{P}_\perp}{dt^2} + \omega_L^2(t) \vec{P}_\perp = 0. \quad (7.2.18)$$

Это уравнение описывает вращение части вектора  $\vec{P}$ , перпендикулярной мгновенному направлению поля  $\hat{b}(t)$  с мгновенной частотой  $\omega_L(t)$ . Его решение можно представить в виде:

$$\vec{P}_\perp(t) = \vec{p}_{x\perp}(t) \cos[\lambda(t) + \phi] + \vec{p}_{y\perp}(t) \sin[\lambda(t) + \phi], \quad (7.2.19)$$

где

$$\lambda(t) = \int_0^t d\tau \omega_L(\tau), \quad (7.2.20)$$

а перпендикулярные полю векторы  $\vec{p}_{x,y,z}(t)$  медленно меняются со временем. Их конкретный вид зависит от поля  $\vec{B}(t)$ . В начальный момент времени  $t = 0$  имеем:

$$\begin{aligned} P_{x,0} &= p_{x\perp}(0) \cos \phi, \\ P_{y,0} &= p_{y\perp}(0) \sin \phi, \end{aligned} \quad (7.2.21)$$

где  $p_{x\perp}(0)$  и  $p_{y\perp}(0)$  – проекция  $\vec{P}_{x,y,\perp}$  на оси  $x, y$ , лежащие в плоскости, перпендикулярной начальному направлению поля  $\vec{B}(0)$ .

В обратном предельном случае неадиабатического прохождения нейтрона, когда поле меняется очень быстро и неравенства (7.2.12) и (7.2.13) надо заменить на противоположные, поле практически не влияет на вектор поляризации и его величина и направление остается неизменным. В этом легко убедиться, переписав уравнение (7.2.2) в интегральном виде:

$$\vec{P}(t) = \vec{P}_0 - \frac{2\mu_n}{\hbar} \int_0^t d\tau [\vec{B}(\tau) \times \vec{P}(\tau)]. \quad (7.2.22)$$

Будем решать это уравнение методом последовательных приближений и заменим под интегралом  $\vec{P}(\tau)$  на  $\vec{P}_0$ . Тогда, в первом приближении получим:

$$\vec{P}(t) = \vec{P}_0 - \frac{2\mu_n}{\hbar} \left[ \int_0^t d\tau \vec{B}(\tau), \vec{P}_0 \right]. \quad (7.2.23)$$

В этом выражении, в силу условия обратного (7.2.12), второе слагаемое по порядку величины равно  $\bar{\omega}_L \tau P_0 \ll P_0$ .

Таким образом, в неадиабатическом пределе поле слабо влияет на вектор поляризации и в первом приближении этим влиянием можно пренебречь. В адиабатическом пределе часть поляризации, параллельная полю, поворачивается вместе с полем, а перпендикулярная полю часть вращается вокруг мгновенного направления поля с мгновенной ларморовой частотой  $\omega_L \tau \cong 1$ .

### 7.2.2. Принцип нейтронного спинового эха

Свойство прецессии поляризации спина нейтрона в магнитном поле имеет применение в современных исследованиях. Наибольшее распространение в последнее время получил метод *нейтронного спинового эха* (НСЭ), который сегодня включен во все виды рассеяния нейтронов: неупругое рассеяние, дифракцию, малоугловое рассеяние и рефлектометрию.

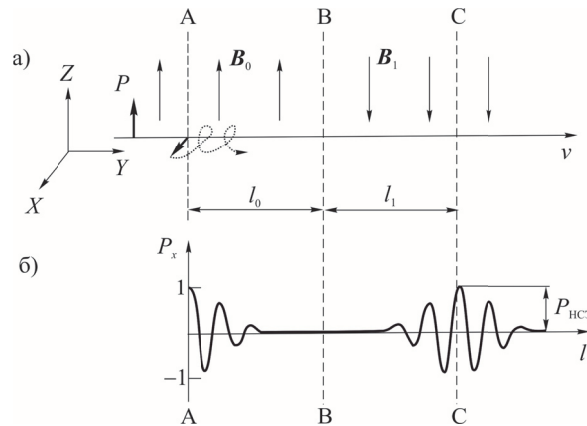
Первоначально метод НСЭ был разработан как специальная экспериментальная методика, применяющаяся в экспериментах по неупругому рассеянию нейтронов [Mezei, 1972]. Метод НСЭ существенно отличался от «классических» методов неупругого рассеяния как с точки зрения основной его идеи, так и с технической точки зрения. Принцип, заложенный в основу метода НСЭ, заключается в использовании эффекта ларморовой прецессии спина нейтрона в магнитном поле, который был впервые применен Г.М. Драбкиным с соавторами в Гатчине [Драбкин и др., 1969]. В своей работе они показали, что если поляризация нейтронного пучка изначально направлена вдоль вектора ведущего магнитного поля  $\vec{H}_0$ , то при повороте вектора поляризации  $\vec{P}$  в плоскость, перпендикулярную вектору  $\vec{H}_0$ , начинается ларморова прецессия нейтронов. Принцип метода НСЭ (так называемый фокусирующий эффект)

основывается на том, что скорости нейтронов до и после рассеяния на образце измеряются с помощью ларморовой прецессии спина нейтрона в магнитном поле. В такого рода измерениях информация об изменении скорости (энергии) данного нейтрона в процессе рассеяния напрямую связана с количеством прецессий его спина во внешнем магнитном поле.

Фокусирующий эффект заключается в следующем. Монохроматический пучок нейтронов влетает в соленоид длины  $L$ . Вектор поляризации нейтронов  $\vec{P}$  перпендикулярен магнитному полю  $\vec{H}_0$  внутри соленоида. Спин каждого нейтрона делает определенное количество ларморовых прецессий, которое определяется скоростью (энергией) нейтрона, при этом на выходе из соленоида пучок полностью или частично деполаризуется, в зависимости от степени монохроматизации пучка. После рассеяния нейтронов на образце, они пролетают через второй соленоид такой же длины. Магнитные поля в соленоидах равны по величине, но противоположны по направлению. Если энергия нейтронов и направление поляризации не изменились при прохождении через образец, то после выхода из второго соленоида поляризация полностью восстанавливается. Такой принцип позволяет очень точно (до  $10^{-10}$  эВ) контролировать изменение энергии нейтрона, что определяет высокое разрешение метода НСЭ.

Отличительной особенностью НСЭ является то, что в данном методе отсутствует взаимосвязь между интенсивностью (коллимацией) нейтронного пучка и разрешением. Другими словами, разрешение метода определяется не коллимацией или степенью монохроматизации пучка, а величиной и однородностью магнитного поля, в котором прецессирует спин нейтрона.

Основные черты метода НСЭ показаны на рис. 7.2.1. Компонента вектора поляризации  $P_z$  направлена по полю  $\vec{B}_0$ .



**Рис. 7.2.1.** Принцип метода НСЭ: а) схема эксперимента, где А и С положения  $\pi/2$  – вращателей (спинфлипперов); б) иллюстрация НСЭ сигнала, сформированного прецессией компоненты  $P_x$  [Mezei, 1980].

В положении А вектор поляризации поворачивается в направлении  $X \pi/2$  – вращателем. После этого компонента вектора поляризации  $P_x$  прецессирует относительно  $\vec{B}_0$  в  $XY$  плоскости, пролетая расстояние  $l_0$  воздействия поля. Согласно общей теории (§ 7.2.1) выражение для угла ларморовской прецессии имеет вид

$$\alpha = \omega_L t = \gamma l_0 B_0 / v, \quad (7.2.24)$$

где  $\gamma = 1.833 \cdot 10^8$  [рад  $c^{-1}T^{-1}$ ]. Компонента  $P_x$  для пучка нейтронов с распределением по скорости  $f(v)$  на расстоянии  $l$  от А определяется выражением:

$$P_x = P_0 \langle \cos \alpha \rangle = \int f(v) \cos(\gamma l B_0 / v) dv. \quad (7.2.25)$$

С ростом  $l$  различия значений  $\alpha$  для разных скоростей нейтронов в пучке увеличивается. Это означает, что ларморовская прецессия компоненты  $P_x$  будет расфазироваться и в результате  $P_x$  стремится к нулю в точке В на рис. 7.2.1б. Период подавления флуктуаций на пути АВ связан со средней скоростью нейтронов. Чтобы измерить изменение скорости в эксперименте по рассеянию эффект расфазировки из-за распределения скоростей  $f(v)$  надо устранить. Это можно сделать, организовав прецессию в обратном направлении после заданного времени. На рис. 7.2.1 этот процесс происходит на интервале ВС, где магнитное поле  $\vec{B}_1$  направлено в противоположном направлении относительно  $\vec{B}_0$ . Результирующий угол прецессии в точке С равен

$$\alpha = \alpha_{(AB)} - \alpha_{(BC)} = \frac{\gamma}{v} (l_0 B_0 - l_1 B_1). \quad (7.2.26)$$

Если  $l_0 B_0 = l_1 B_1$ , то  $\alpha = 0$  для всех скоростей  $v$ . В результате  $P_x = \langle \cos \alpha \rangle = P_0$ . Этот случай называется конфигурацией симметричного поля. Сигнал НСЭ в точке С появляется при условии

$$\partial \alpha / \partial v = 0 \quad (7.2.27)$$

для всех нейтронов в пучке.

Максимальная прецессия компоненты  $P_x$  будет, когда все нейтроны в пучке будут иметь одинаковое направление в точке, где измеряется  $P_x$ . Форма сигнала НСЭ есть мера локальной расфазировки прецессии около максимума эха, который на схеме без мишени (рис. 7.2.1) определяется распределением скоростей  $f(v)$ . Точнее, поскольку  $P_x$  определяется выражением (7.2.25), то определяющим является преобразование Фурье функции распределения для  $1/v$ , которое равно  $v^2 f(v)$ , что равнозначно спектру длин волн нейтронов.

На практике НСЭ сигнал определяется измерением зависимости от  $B_1$ , а не от  $l_1$ . Эта конфигурация называется асимметричной. Второе отличие реальных



экспериментов от идеальной схемы состоит в том, что  $\vec{B}_0$  и  $\vec{B}_1$  делают параллельными, а направление прецессии изменяют с помощью спин-вращателя в точке В. И наконец, поскольку анализ вектора поляризации можно выполнить только в направлении приложенного на анализаторе поля, то компоненту  $P_x$  поворачивают  $\pi/2$  – вращателем. То есть измеряемый сигнал относится к  $P_z$ . Это не меняет дела, поскольку форма сигналов для  $P_z$  и  $P_x$  одинакова.

### § 7.3. Преломление и расщепление пучка нейтронов в магнитных средах

Взаимодействие нейтронов с магнитной средой описывается выражением (6.1.6), где  $\vec{B}$  – магнитная индукция в точке  $\vec{r}$ , в которой находится нейтрон,  $\vec{\mu}$  – оператор магнитного момента. Магнитный момент нейтрона отрицателен, т.е. направлен против спина. Это означает, что для нейтронов с проекцией спина по полю энергия взаимодействия положительна, а против поля – отрицательна. Следовательно, магнитная среда для нейтронов может быть оптически неоднородной или оптически активной. На это обратил внимание еще Блох в 1936 г. Позже после появления интенсивных пучков нейтронов от ядерных реакторов Д.Юзом с соавторами были проведены систематические исследования по пропусканию нейтронов через поликристаллическое железо. В ненасыщенном магнитном состоянии железа пучок расширялся, что объяснялось многократным преломлением пучка на доменной структуре при пересечении доменных стенок. При магнитном насыщении уширение пучка исчезало, что связывалось с исчезновением доменных стенок. Позже это явление легло в основу метода рефрактометрии изучения доменов в магнитных материалах.

В 1948 г. А.И.Ахиезер и И.Я.Померанчук [Ахиезер и Померанчук, 1948], и затем Хальперн [Halpern, 1949] указали на возможность поляризации нейтронов с использованием полного внешнего отражения. Экспериментально впервые метод был реализован Юзом и Берджи [Huges and Burgy, 1951].

#### 7.3.1. Двухлучепреломление в однородной магнитной среде

Рассмотрим поведение пучка нейтронов с энергией  $E_0$  в однородной магнитной среде с магнитной индукцией  $\vec{B}$  при падении пучка на поверхность образца под углом. Пусть нейтроны падают на границу раздела областей с магнитной индукцией  $B$  и без магнитной индукции под углом скольжения  $\alpha_0$  (рис. 7.3.1). В падающем пучке обе проекции спина равновероятны.

Закон сохранения энергии приводит к тому, что в области с магнитной индукцией нейтроны с проекциями спина «+» (по полю) и «-» (против поля) имеют различные скорости  $v^+$  и  $v^-$ . Так как магнитная индукция вдоль границы раздела не меняется, то и компонента скорости нейтронов, параллельная границе раздела, остается постоянной  $v_{\parallel}^+ = v_{\parallel}^- = v_{\parallel}$ . Это означает, что изменяется

компонента скорости, перпендикулярная границе раздела, т.е. нейтроны начинают двигаться в различных направлениях. В магнитной среде первоначально неполяризованный пучок нейтронов расщепляется в пространстве на два поляризованных пучка: с проекцией спина «+» и проекцией спина «-» на направление магнитной индукции. Найдем величину поперечного пространственного расщепления  $l$ . Из закона сохранения энергии получим:

$$v_{\perp}^{+} = v_{\perp} \sqrt{1 - \frac{2\mu B}{mv_{\perp}^2}} \approx v_{\perp} \left(1 - \frac{\mu B}{2mv_{\perp}^2}\right),$$

$$v_{\perp}^{-} = v_{\perp} \sqrt{1 + \frac{2\mu B}{mv_{\perp}^2}} \approx v_{\perp} \left(1 + \frac{\mu B}{2mv_{\perp}^2}\right).$$

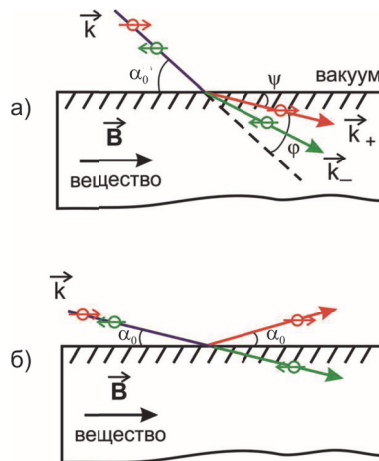


Рис. 7.3.1. Поперечное пространственное расщепление пучка в однородном магнитном поле.

В этих выражениях для оценки мы предположили, что  $\frac{\mu B}{mv_{\perp}^2} = \frac{\mu B}{2E \sin^2 \alpha_0} \approx \frac{10^{-6}}{\sin^2 \alpha_0} \ll 1$ . Это условие может выполняться при относительно больших углах  $\alpha_0$ . С другой стороны, при малых углах скольжения  $\alpha_0 \sim 10^{-3}$  радиан может выполняться условие  $\frac{\mu B}{mv_{\perp}^2} \approx 1$ . То есть часть кинетической энергии, соответствующей перпендикулярной компоненте скорости нейтронов, становится сравнимой с потенциальной энергией взаимодействия нейтронов с магнитной индукцией.

Учитывая, что

$$\operatorname{tg} \alpha^{\pm} = \frac{v_{\perp}^{\pm}}{v_{\parallel}}; \quad \operatorname{tg} \alpha_0 = \frac{v_{\perp}}{v_{\parallel}}; \quad v_{\perp} = v \sin \alpha_0; \quad v_{\parallel} = v \cos \alpha_0,$$

находим величину поперечного пространственного расщепления пучка на расстоянии  $L$  вдоль поверхности раздела для нейтронов со скоростью  $v = 1000$  м/с в области с магнитной индукцией  $B = 1$  кГс:

$$l = L(\operatorname{tg}\alpha^- - \operatorname{tg}\alpha^+) = \frac{L}{\cos\alpha_0} \frac{\mu B}{\sin\alpha_0 E} \approx \frac{L}{\cos\alpha_0 \sin\alpha_0} \cdot 10^{-6}.$$

При малых углах скольжения  $\alpha_0 = 3 \cdot 10^{-3}$  радиан получим, что на расстоянии  $L = 1$  м пучки нейтронов разойдутся в пространстве на  $l = 0,3$  мм. А на расстоянии 10 м эта величина составит  $l = 3$  мм. С помощью существующих методов можно наблюдать пространственное расщепление пучка порядка миллиметра. Угловое расстояние между пучками  $\Delta\alpha = \alpha^- - \alpha^+$  зависит от угла  $\alpha_0$ :

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha_0} = \frac{\mu B}{\alpha_0^2} = \frac{10^{-6}}{\alpha_0^2} \approx 0,1. \text{ Изменение скорости составляет малую величину } \frac{\Delta v}{v} \approx 10^{-6}.$$

Расщепление пучка нейтронов в однородной магнитной среде можно представить на языке нейтронной оптики с помощью показателя преломления [Ахизер и Померанчук, 1948]. Согласно (6.1.6) в среде нейтроны со спином, направленным по полю, будут средой «выталкиваться», а со спином против поля – «втягиваться». Поэтому в среде преломленный нейтронный пучок разделится на две части (расщепится): поляризованные по полю и против него. Показатель преломления теперь принимает вид

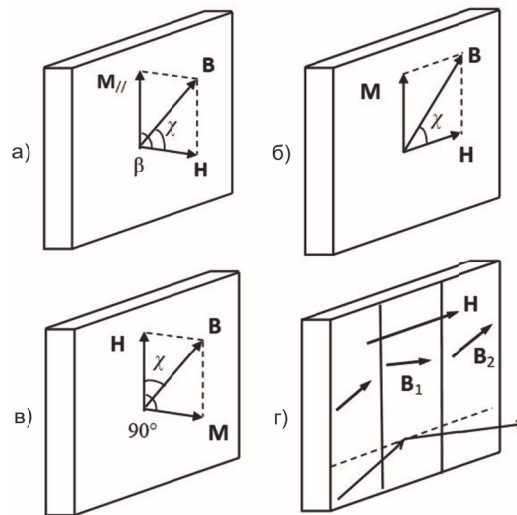
$$n_{\pm} = n_0 \mp \mu B / E_0. \quad (7.3.1)$$

Здесь первое слагаемое обусловлено взаимодействием нейтронов с ядрами, второе – магнитным взаимодействием, зависящим от направления спина нейтрона. При достижении критического угла падения должно наступить полное отражение. Но теперь у расщепленного пучка будет два критических угла. Для нейтронов со спином, направленным по полю, полное отражение наступит раньше, т.к.  $|n_+| < 1$  при угле  $\alpha_0 = (1 - n_+^2)^{1/2}$ . Для нейтронов со спином, направленным против поля, как правило,  $|n_-| \geq 1$  и они останутся в среде. В результате можно получить пучок поляризованных нейтронов (поляризованный пучок). Сегодня это наиболее используемый способ получения поляризованных пучков. Для нейтронов низких энергий  $|n_{\pm}| - 1 \approx 10^{-6} \div 10^{-4}$ . Соответственно критический угол лежит в интервале от  $10'$  до  $1^\circ$ . Поэтому магнитные зеркала дают узкие пучки поляризованных нейтронов, удобные в физических исследованиях. Заметим, что в случае магнитных систем оптические аналогии не так очевидны, поскольку магнитное взаимодействие является дальнедействующим и поэтому не всегда удается описать взаимодействие нейтрона с намагниченным образцом с помощью понятия коэффициента преломления. Кроме того, как уже было замечено в § 3.1, коэффициентом преломления можно пользоваться только в случае идеальной (без шероховатостей) поверхности (см. § 8.4).

### 7.3.2. Расщепление пучка в магнитно-неколлинеарных средах

Более сложная и разнообразная картина расщепления нейтронных пучков возникает при скользющем падении нейтронов на магнитно-неколлинеарную среду, когда внешнее магнитное поле и магнитная индукция образца неколлинеарны. Впервые явление расщепления поляризованного пучка нейтронов было обнаружено В.К.Игнатовичем в 1978 г. при теоретическом описании деполяризации поляризованных ультрахолодных нейтронов при пропускании через намагниченные пленки [Игнатович, 1986]. Игнатович также предсказал четырехлучевое преломление неполяризованного пучка на границе раздела магнитно-неколлинеарных сред. В 1995 г. Г.П.Фельшер (Felcher) в Национальном институте стандартов и технологий (NIST, США) наблюдал экспериментально такое расщепление нейтронных пучков. Детально расщепление нейтронных пучков под влиянием неколлинеарных магнитных полей как в геометрии отражения, так и пропускания через тонкие пленки, было изучено в Лаборатории нейтронной физики им. И.М.Франка в Дубне [Кожевников, 2019]. В настоящее время метод расщепления нейтронных пучков при скользщем падении на магнитно-неколлинеарные среды находит все большие применения.

Возможны различные варианты неколлинеарности внешнего магнитного поля  $\vec{H}$  и магнитной индукции образца  $\vec{B}$  (рис. 7.3.2).

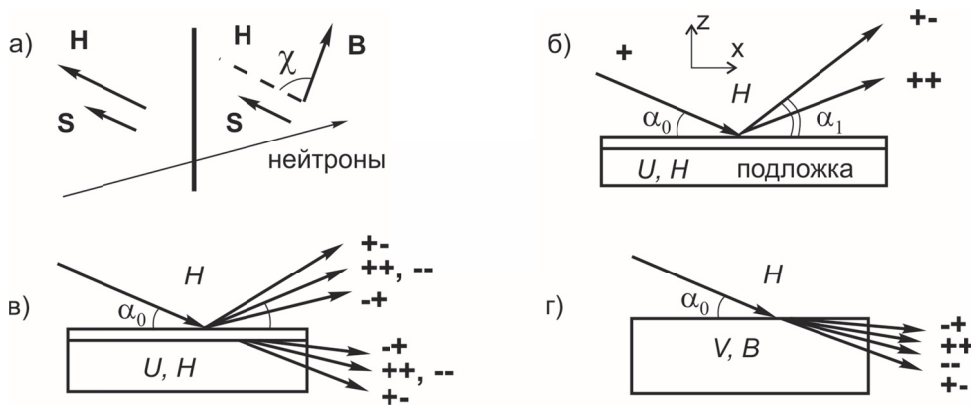


**Рис. 7.3.2.** Магнитно-неколлинеарные системы: а) анизотропия формы; б) анизотропия в плоскости; в) перпендикулярная анизотропия; г) доменная структура.

Это может быть однородно намагниченная пленка, к поверхности которой под углом  $\beta$  приложено поле  $\vec{H}$  (рис. 7.3.2а). В этом случае из-за анизотропии формы возникает размагничивающее поле, которое компенсирует компоненту намагниченности, перпендикулярную плоскости пленки. В итоге вектор

магнитной индукции  $\vec{B}$  выходит из плоскости пленки и составляет некоторый угол  $\chi$  с направлением вектора внешнего поля  $\vec{H}$ . Магнитная неколлинеарность может возникнуть и при наличии внутренней магнитной анизотропии в пленке. Например, внешнее магнитное поле приложено параллельно плоскости пленки, но внутри образца из-за внутренних анизотропных свойств системы существуют выделенные оси легкого намагничивания в плоскости, направление которых отличается от направления внешнего магнитного поля (рис. 7.3.2б). В случае перпендикулярной анизотропии (рис. 7.3.2в) внешнее магнитное поле приложено вдоль плоскости пленки, но вектор намагниченности направлен перпендикулярно плоскости образца. Расщепление пучка можно наблюдать и в доменной структуре (рис. 7.3.2г), в которой слабое внешнее магнитное поле приложено параллельно плоскости пленки. При этом направление вектора магнитной индукции в соседних доменах отличается друг от друга, а доменные стенки расположены перпендикулярно направлению движения нейтронного пучка.

Если на границе раздела есть угол  $\chi$  между векторами внешнего магнитного поля  $\vec{H}$  и магнитной индукции  $\vec{B}$  (рис. 7.3.3а), то происходит переверт спины нейтронов с вероятностью  $\sim \sin^2 \chi$  [Игнатович, 1986]. На рис. 7.3.3б показана геометрия отражения поляризованных нейтронов от магнитно-неколлинеарной пленки на немагнитной подложке во внешнем магнитном поле  $\vec{H}$ . Поляризованный пучок со спином «+» падает под малым углом скольжения  $\alpha_0$  на поверхность пленки и затем отражается от нее под углом скольжения  $\alpha_1$ .



**Рис. 7.3.3.** Схема пространственного расщепления пучка для случая однородно намагниченной пленки в наклонном внешнем магнитном поле: а) спин нейтрона на границе двух магнитно-неколлинеарных сред; б) отражение поляризованного пучка «+» от магнитной пленки на подложке; в) отражение и преломление неполяризованного пучка в случае тонкой магнитной пленки на немагнитной подложке; г) преломление неполяризованного пучка на границе раздела в толстой магнитной пленке.

Проекция волнового вектора вдоль плоскости не меняется:  $k_{1x} = k_{0x}$ ,  $k_{1y} = k_{0y}$ . Тогда закон сохранения энергии нейтронов при отражении нейтронов с переворотом спина «+» можно записать в виде:

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 + \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{+-})^2 - \mu H, \quad (7.3.2)$$

где  $p_0 = k_{0z} \sin \alpha_0$ ,  $p_1 = k_{1z} \sin \alpha_1$ . Для нейтронов отражения без переворота спина «++» закон сохранения энергии выглядит следующим образом:

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 + \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{++})^2 + \mu H. \quad (7.3.3)$$

Аналогично получаем выражения для нейтронов с начальным спином «-»:

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 - \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{-+})^2 + \mu H. \quad (7.3.4)$$

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 - \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{--})^2 - \mu H$$

Учитывая, что при скользющем падении углы  $\alpha_0$  и  $\alpha_1$  малы (порядка минут), с

хорошей точностью имеем:  $p_0 = \frac{2\pi}{\lambda} \alpha_0$ ,  $p_1 = \frac{2\pi}{\lambda} \alpha_1$ . Из выражений (7.3.2) – (7.3.4)

получим, что нейтроны без переворота спина зеркально отражаются от магнитно-неколлинеарной пленки:  $\alpha_1^{++} = \alpha_1^{--} = \alpha_0$ , а нейтроны с переворотом спина нейтронов испытывают незеркальное отражение:

$$(\alpha_1^{+-})^2 = \alpha_0^2 + 2\mu H \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}, \quad (7.3.5)$$

$$(\alpha_1^{-+})^2 = \alpha_0^2 - 2\mu H \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}. \quad (7.3.6)$$

Таким образом, в скользщей геометрии при отражении от магнитно-неколлинеарной пленки поляризованный пучок нейтронов (рис. 7.3.3б) расщепляется в пространстве на два пучка. Пучок нейтронов без переворота отражается зеркально, а пучок нейтронов с переворотом спина испытывает незеркальное отражение.

Если пучок не поляризован, то в геометрии отражения наблюдается три пучка – один зеркальный и два незеркальных (рис. 7.3.3в):  $\alpha_1^{+-} > \alpha_0$  и  $\alpha_1^{-+} > \alpha_0$ .

Для отраженного пучка «-+» существует критическое условие  $\alpha_0^2 \leq 2\mu H \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}$ ,

когда кинетической энергии нейтронов не хватает для преодоления изменения потенциальной энергии в магнитном поле. Такой пучок не отражается от пленки.

В случае пропускания белого пучка через магнитно-неколлинеарную пленку во внешнем магнитном поле  $H$  и преломлении в немагнитной подложке с ядерным нейтронно-оптическим потенциалом  $U$  (рис. 7.3.3в) закон сохранения энергии имеет вид:

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 + \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{+-})^2 + U - \mu H, \quad (7.3.7)$$

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 - \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{-+})^2 + U + \mu H. \quad (7.3.8)$$

Для углов скольжения преломленных в немагнитной подложке пучков получим следующие выражения:

$$(\alpha_1^+)^2 = \alpha_0^2 + (U - 2\mu H) \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}, \quad (7.3.9)$$

$$(\alpha_1^{++})^2 = (\alpha_1^{--})^2 = \alpha_0^2 - U \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}, \quad (7.3.10)$$

$$(\alpha_1^{-+})^2 = \alpha_0^2 - (U + 2\mu H) \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}. \quad (7.3.11)$$

Из (7.3.9) – (7.3.11) видно, что, если падающий пучок нейтронов поляризован, то при пропускании через тонкую магнитно-неколлинеарную пленку на немагнитной подложке он расщепляется на два пучка для одного начального спинового состояния: (+-, ++), или (-+, --).

Если преломление происходит на границе раздела толстой магнитной подложки с ядерным потенциалом  $V$  и магнитной индукцией  $B$  (рис. 7.3.3г), то закон сохранения энергии имеет вид:

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 + \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{+-})^2 + V - \mu B, \quad (7.3.12)$$

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 - \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{-+})^2 + V + \mu B. \quad (7.3.13)$$

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 + \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{++})^2 + V + \mu B, \quad (7.3.14)$$

$$\frac{\hbar^2}{2m} p_0^2 - \mu H = \frac{\hbar^2}{2m} (p_1^{--})^2 + V - \mu B. \quad (7.3.15)$$

Из (7.3.12) – (7.3.15) находим углы скольжения преломленных пучков:

$$(\alpha_1^{+-})^2 = \alpha_0^2 - [V - \mu(B + H)] \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}, \quad (7.3.16)$$

$$(\alpha_1^{-+})^2 = \alpha_0^2 - [V + \mu(B + H)] \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}, \quad (7.3.17)$$

$$(\alpha_1^{++})^2 = \alpha_0^2 - [V + \mu(B - H)] \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}, \quad (7.3.18)$$

$$(\alpha_1^{--})^2 = \alpha_0^2 - [V - \mu(B - H)] \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}. \quad (7.3.19)$$

Из (7.3.16) – (7.3.19) следует, что поляризованный пучок нейтронов при преломлении в толстой магнитно-неколлинеарной подложке расщепляется в пространстве на два пучка. Для неполяризованного падающего пучка

наблюдается четыре пучка (рис. 7.3.3г), так как величина магнитной индукции не равна величине внешнего магнитного поля  $B \neq H$ .

Пространственное расщепление пучков нейтронов позволяет создавать пучки с заданными свойствами [Aksenov et al., 2001]. Отметим возможность создания простого поляризатора с высокой степенью поляризации, теоретически до 100%. Этот эффект обусловлен тем, что при зеемановском пространственном расщеплении происходит разделение нейтронных пучков определенных спиновых переходов « $-+$ » и « $+ -$ », в результате чего в области незеркального отражения нейтронный пучок полностью поляризован, а фон (нейтроны других спиновых состояний) отсутствует.

В работе [Кожевников и др., 2018] получена степень поляризации  $P = 97\%$  для больших длин волн нейтронов в интервале  $0.8 - 1$  нм, что заметно выше поляризующей способности (до 80%) стандартных суперзеркал для этих длин волн. Хотя коэффициенты отражения  $R$  с переворотом спина в поляризаторе на основе пространственного расщепления ниже по величине, но фактор  $P^2R$  сравним с суперзеркалами для больших длин волн.

В некоторых случаях высокая степень поляризации при меньшей интенсивности, но низком фоне, может оказаться выигрышным фактором, по сравнению с более интенсивным пучком при меньшей степени поляризации и высоком уровне фона. Этот эффект, например, сыграл решающую роль при регистрации стоячих волн в поле поляризованных нейтронов (§ 7.4).

Эффект расщепления пучка нейтронов в магнитно-неколлинеарных системах используется как метод изучения магнитных доменов и кластеров магнитного порядка.

### 7.3.3. Магнитные домены и кластеры

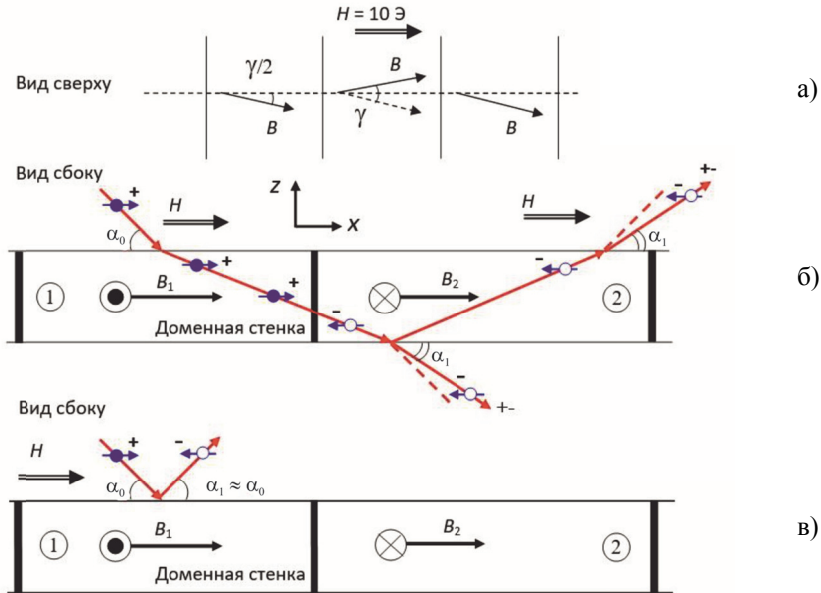
Рассмотрим доменную структуру магнитной тонкой пленки, изображенную на рис. 7.3.4. Внешнее магнитное поле малой величины ( $H = 10$  Э) приложено параллельно плоскости пленки вдоль направления нейтронного пучка. Полосовые домены с магнитной индукцией  $B = 1$  Тл располагаются перпендикулярно направлению внешнего магнитного поля и направлению пучка. Угол между вектором магнитной индукции  $\vec{B}$  и внешним полем равен  $\gamma/2$ . Угол между  $\vec{B}$  в соседних доменах равен  $\gamma$ . Будем полагать, что внешнее магнитное поле пренебрежимо мало по сравнению с величиной магнитной индукции в доменах:  $H \ll B$ , то есть  $H = 0$ .

Вид сбоку на доменную структуру показан на рис. 7.3.4б. Ось  $Ox$  направлена параллельно поверхности пленки, а ось  $Oz$  – перпендикулярно поверхности. Пусть пучок нейтронов с начальным спином « $+$ » во внешнем магнитном поле падает на поверхность тонкой пленки на немагнитной подложке под малым углом скольжения  $\alpha_0$ . Далее нейтроны проходят без переворота спина в домен 1 с величиной магнитной индукции  $B$ . На границе раздела «воздух-домен



1» свойства среды вдоль оси  $Ox$  не меняются:  $k_{0x}^+ = k_{1x}^+$ . А меняются свойства среды вдоль оси  $Oz$ :

$$(k_{1z}^+)^2 = (k_{0z}^+)^2 - (V + \mu B) \frac{2m}{\hbar^2}. \quad (7.3.20)$$



**Рис. 7.3.4.** Геометрия расщепления пучка в доменной структуре: а) вид сверху; б) вид сбоку для случая большой величины внутренней индукции  $B$ ; в) вид сбоку для случая отражения от поверхности в малом внешнем магнитном поле  $B_0$ .

При пересечении нейтронами доменной стенки с некоторой вероятностью происходит переворот спина «+–», при этом потенциальная энергия нейтронов изменяется на величину  $(-2\mu B)$ . Свойства среды вдоль доменной стенки не меняются:

$$k_{1z}^+ = k_{2z}^- \quad (7.3.21)$$

А изменяется на малую относительную величину  $10^{-3}$  скорость нейтронов в направлении параллельно плоскости пленки (перпендикулярно доменной стенке:  $(k_{2x}^-)^2 = (k_{1x}^+)^2 + 2\mu B \frac{2m}{\hbar^2}$ , где  $2\mu B \frac{2m}{\hbar^2} \ll (k_{1x}^+)^2$ . Затем нейтроны в домене 2 отражаются без переворота спина. Вдоль поверхности пленки свойства среды не меняются:  $k_{1x}^{+-} = k_{2x}^-$ . А в перпендикулярном поверхности направлении изменяется оптический потенциал среды:

$$(k_{1z}^{+-})^2 = (k_{2z}^-)^2 + (V - \mu B) \frac{2m}{\hbar^2}. \quad (7.3.22)$$

Из уравнения (7.3.22) с учетом условий (7.3.20) и (7.3.21) получим, что нейтроны с переворотом спина «+→» при прохождении через доменную стенку испытывают незеркальное отражение от пленки:

$$(\alpha_1^{+-})^2 = \alpha_0^2 - 2\mu B \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}. \quad (7.3.23)$$

Подобное рассмотрение для спинового перехода «-+» дает выражение для угла незеркального отражения:

$$(\alpha_1^{-+})^2 = \alpha_0^2 + 2\mu B \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}. \quad (7.3.24)$$

Можно видеть, что выражения (7.3.23) и (7.3.24) совпадают с выражениями (7.3.5) и (7.3.6) для случая отражения от однородной пленки в большом внешнем наклонном поле, если поменять местами спиновые переходы или знак магнитной индукции.

Если рассматривать нейтроны, которые прошли доменную стенку с переворотом спина и испытали преломление в немагнитной подложке с ядерным потенциалом  $U$ , то получаются следующие выражения для углов скольжения преломленных пучков:

$$(\alpha_1^{+-})^2 = \alpha_0^2 - (U + 2\mu B) \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}, \quad (7.3.25)$$

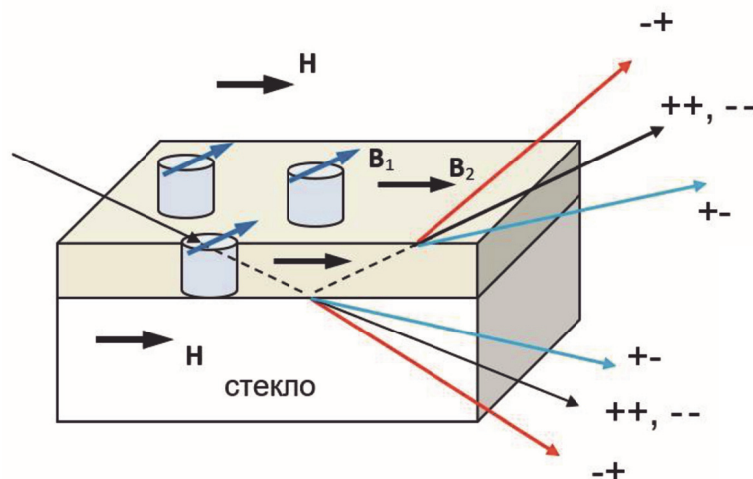
$$(\alpha_1^{-+})^2 = \alpha_0^2 - (U - 2\mu B) \lambda^2 \frac{2m}{\hbar^2}. \quad (7.3.26)$$

Уравнения (7.6.25) и (7.6.26) также совпадают с уравнениями (7.6.9) и (7.6.11), если поменять местами спиновые переходы с переворотом спина или изменить на противоположный знак магнитной индукции.

Вектор магнитной индукции в домене 1 направлен под углом  $\gamma/2$  к вектору внешнего магнитного поля, поэтому при отражении от поверхности или прохождении нейтронов с поверхности внутрь домена также с некоторой вероятностью происходит переворот спина нейтронов (рис. 7.3.4в). Но так как величина внешнего поля мала  $H \approx 0$ , то и пространственное расщепление согласно уравнениям (7.3.5), (7.3.6), (7.3.9) и (7.3.11) пренебрежимо мало. Нейтронные пучки с переворотом спина отражаются в том же направлении, что и без переворота спина.

Еще одним примером системы с внутренней магнитной анизотропией является пленка с магнитно-неколлинеарными кластерами. На рис. 7.3.5 показана геометрия эксперимента. Магнитная пленка на немагнитной подложке помещена во внешнее магнитное поле малой величины  $H$ , приложенное параллельно плоскости пленки. Магнитная индукция в пленке направлена в плоскости образца вдоль вектора внешнего магнитного поля. В пленке существуют магнитные кластеры, в которых вектор магнитной индукции  $B_1$  направлен под углом к вектору магнитной индукции  $B$  в пленке. Нейтронный пучок падает на поверхность под малым углом скольжения. Граница между магнитным кластером

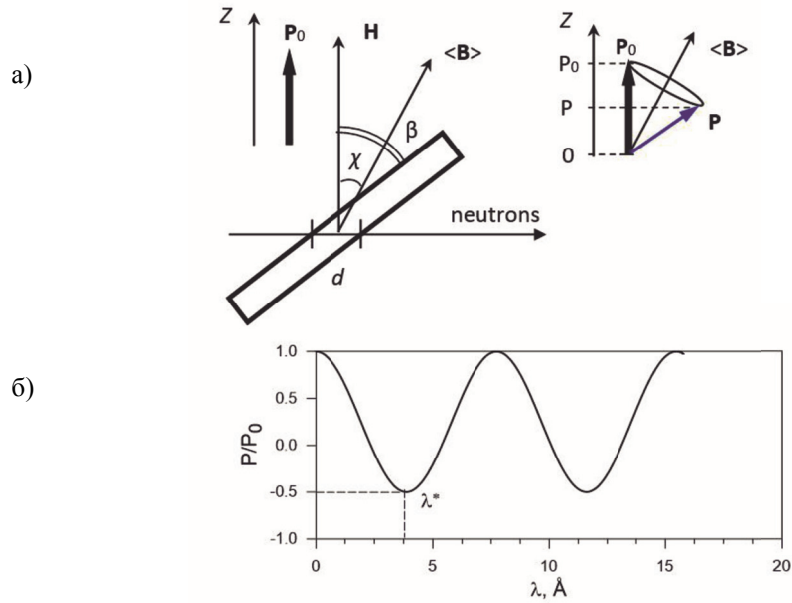
и остальной частью пленки расположена перпендикулярно направлению пучка нейтронов. Переворот спина происходит при пересечении нейтронами границы раздела «кластер-пленка». Далее пучок нейтронов преломляется в немагнитной подложке или отражается от нижней стороны пленки и выходит через поверхность пленки в направлении отраженного пучка. Так как переворот спина происходит во внутреннем магнитном поле, то наблюдается большое пространственное расщепление аналогично геометрии доменной структуры на рис. 7.3.4б.



**Рис. 7.3.5.** Модель магнитно-неколлинеарных кластеров в пленке FeGd на стеклянной подложке. Нейтроны падают под малым углом скольжения на поверхность пленки и проходят через кластеры. Переворот спина происходит на перпендикулярной границе раздела «кластер-пленка». Пространственное расщепление пучка наблюдается при прохождении нейтронов через поверхность пленки (отражение) и через нижнюю границу раздела «пленка-подложка» (преломление).

#### 7.3.4. Деполяризация нейтронного пучка

Пучок поляризованных нейтронов при прохождении через ферромагнитный образец, если он не намагничен и имеет доменную структуру, деполяризуется, то есть его поляризация уменьшается. Теория этого процесса была создана Халперном и Хольштейном [Halpern and Holstein, 1941]. Они предположили, что спины нейтронов прецессируют в поле каждого домена на небольшой угол в зависимости от величины индукции, размера домена и скорости нейтрона. Этот процесс не зависит от направления поляризации и магнитного состояния образца. Теория Халперна и Хольштейна лежит в основе метода деполяризации при изучении магнитных доменов. Он успешно применяется для исследования как объемных образцов, так и тонких пленок.



**Рис. 7.3.6.** Ларморовская прецессия спина нейтронов: а) геометрия эксперимента; б) нормированная поляризация пучка как функция длины волны нейтронов, рассчитанная для параметров  $B = 1.2$  Тл,  $d = 14.62$  мкм,  $\chi = 60^\circ$ .

На рис. 7.3.6 показана геометрия экспериментального метода ларморовской прецессии по времени пролета [Кожевников и др., 2018а]. Внешнее магнитное поле  $\vec{H}$  приложено под углом  $\beta$  к поверхности толстой магнитной пленки, а поляризованный нейтронный пучок проходит через магнитную пленку. Путь нейтронов внутри пленки равен величине  $d$ , которая рассчитывается из геометрии эксперимента для известной толщины пленки и угла  $\beta$ . Усредненное по толщине пленки направление магнитной индукции  $\langle \vec{B} \rangle$  составляет угол  $\chi$  с направлением внешнего магнитного поля. Вектор поляризации начального пучка  $\vec{P}_0$  направлен вдоль оси  $Oz$  параллельно приложенному внешнему магнитному полю. Внутри пленки происходит ларморова прецессия вектора поляризации (или спина нейтронов) с ларморовой частотой  $\omega_L$ . Ларморова частота зависит только от величины магнитной индукции в пленке и не зависит от длины волны нейтронов. Угол, на который поворачивается вектор поляризации, зависит от времени  $t$  прохождения расстояния  $d$  нейтронами со скоростью  $v$ :  $\varphi_L = \omega_L t = \gamma_n \langle B \rangle d / v$ . Скорость нейтронов связана с длиной волны нейтронов  $\lambda$  соотношением  $1/v = \lambda m / h$ , где  $m$  – масса нейтронов,  $h$  – постоянная Планка. Угол ларморовской прецессии можно переписать в виде  $\varphi_L = \omega_\lambda \lambda$ , где  $\omega_\lambda = 0.04633 \langle B \rangle d$  и единицы измерения  $\omega_\lambda$  [ $\text{\AA}^{-1}$ ],  $\langle B \rangle$  [Тл],  $d$  [мкм].

В эксперименте измеряется проекция вектора поляризации на ось  $Oz$  без образца  $P_0(\lambda)$  и после прохождения образца  $P(\lambda)$ . Для случая однородной магнитной индукции  $\langle \vec{B} \rangle = \vec{B}$  из геометрического рассмотрения на рис. 7.3.6а получается следующее выражение:

$$P(\lambda)/P_0(\lambda) = \cos^2 \chi + \sin^2 \chi \cos \phi = \cos^2 \chi + \sin^2 \chi \cos(\omega_\lambda \lambda). \quad (7.3.27)$$

Если есть магнитные флуктуации в пленке, то в выражение (7.3.27) вводят дополнительные коэффициенты деполаризации  $D_{\parallel}$  и  $D_{\perp}$ :  $P(\lambda)/P_0(\lambda) = D_{\parallel} \cos^2 \chi + D_{\perp} \sin^2 \chi \cos \phi$ . В теории Хальперна-Хольштейна коэффициенты деполаризации описываются экспонентами:

$$P(\lambda)/P_0(\lambda) = \exp(-A_1 \lambda^2) \cos^2 \chi + \exp(-A_2 \lambda^2) \sin^2 \chi \cos(\omega_\lambda \lambda), \quad (7.3.28)$$

где  $A_1$  и  $A_2$  – постоянные величины, которые зависят от средних квадратичных флуктуаций  $\langle B_{\parallel}^2 \rangle$  и  $\langle B_{\perp}^2 \rangle$ , усредненного размера неоднородностей.

На рис. 7.3.6б показана нормированная поляризация в зависимости от длины волны, рассчитанная по формуле (7.3.27) для следующих параметров:  $B = 1.2$  Тл,  $d = 14.62$  мкм,  $\chi = 60^\circ$ . Можно видеть, что минимум поляризации наблюдается при характерной длине волны  $\lambda^*$ , которая соответствует половине периода осцилляций функции поляризации:  $\phi_L = \omega_\lambda \lambda^* = \pi$ . Отсюда можно напрямую определить величину магнитной индукции:

$$B = \frac{\pi}{0.04633d\lambda^*}. \quad (7.3.29)$$

Из степени поляризации в первом минимуме кривой из уравнения (7.3.27) можно извлечь величину угла  $\alpha$ .

$$\chi = \arccos \left[ \sqrt{\frac{1 + P(\lambda^*)/P_0(\lambda^*)}{2}} \right]. \quad (7.3.30)$$

В эксперименте измеряется осциллирующая зависимость нормированной поляризации нейтронного пучка от длины волны нейтронов. В первом минимуме, соответствующем половине периода ларморовской прецессии, определяются экспериментальные величины длины волны  $\lambda^*$  и степени поляризации  $P(\lambda^*)/P_0(\lambda^*)$ . Затем по формулам (7.3.29) и (7.3.30) напрямую рассчитываются значения магнитной индукции в пленке и угол  $\alpha$  между векторами внешнего магнитного поля и магнитной индукции.

Теория Халперна-Хольштейна предполагает изотропию процесса. Однако это не всегда так. Возможно анизотропное распределение намагниченности в доменах. Этот случай был исследован Малеевым и Рубаном. Они рассмотрели

деполяризацию нейтронов как результат рассеяния на предельно малые углы в области прямого пучка и показали, что поляризация, перпендикулярная скорости нейтрона  $P_{\perp}$ , деполяризуется сильнее, чем параллельная  $P_{\parallel}$ . Уменьшение поляризации относительно начальной  $P_0$  происходит по экспоненциальному закону:

$$\begin{aligned} P_{\parallel} &= P_{0,\parallel} \exp(-\sigma NL), \\ P_{\perp} &= P_{0,\perp} \exp(-(3/2)\sigma NL), \end{aligned} \quad (7.3.31)$$

где  $\sigma$  – сечение рассеяния нейтронов в узком конусе углов в пределах расходимости пучка,  $N$  – плотность элементарных ячеек,  $L$  – толщина образца. Из соотношений (7.3.31) следует «правило 3/2» Малеева-Рубана:

$$\alpha = \ln(P_{\perp}/P_{0,\perp}) / \ln(P_{\parallel}/P_{0,\parallel}) = 3/2, \quad (7.3.32)$$

которое отражает наличие анизотропии и позволяет изучать магнитную текстуру в магнитно-изотропном образце.

Природа этого эффекта обусловлена тем, что сечение магнитного рассеяния зависит от взаимного направления начальной поляризации  $\vec{P}_0$  относительно намагниченности образца  $\vec{M}$ , направления вектора рассеяния  $\hat{q} = \vec{q}/q$  и волнового вектора  $\vec{k}_0$  (скорости нейтронов  $\vec{v}$ ). Хальперн и Джонсон [Halpern and Johnson, 1939] показали, что

$$\vec{P} = -\hat{q}(\hat{q}\vec{P}_0). \quad (7.3.33)$$

Для упругого рассеяния на доменах  $\hat{q} \perp \vec{v}$  с соответствующей поляризацией  $P_{\perp}$ , а поляризация вдоль пучка  $P_{\parallel}$  соответствует неупругому рассеянию. Таким образом, соотношение (7.3.33) позволяет понять характер процесса, зная только направление  $\vec{P}$  в пространстве. На этом и основана методика трехмерного (векторного) анализа поляризации, позволяющая разделить упругое и неупругое рассеяние (§ 11.7).

Заметим, что метод деполяризации позволяет изучать магнитные неоднородности не только в сильно магнитных материалах, но и там, где они вызваны электродинамикой и где магнитное рассеяние слабое для наблюдения. В качестве примера можно привести исследования магнитных свойств высокотемпературных сверхпроводников, проведенных в 1990-х годах в Гатчине [Окороков, 2016] и в Дубне [Aksenov et al., 1995].

#### §7.4. Принципы рефлектометрии поляризованных нейтронов

В основе рефлектометрии поляризованных нейтронов (РПН) лежит изложенный в § 3.2 метод рассеяния нейтронов при скользящем падении с соответствующими обобщениями при учете магнитного взаимодействия с

магнитными поверхностями и многослойными структурами. Впервые это было сделано Г.П.Фельшером в 1987 г. [Felcher et al., 1987]. С тех пор РПН получила большое развитие и широкое применение. В настоящее время имеется несколько хороших обзоров [Zabel et al., 2007; Toperverg, 2015; Toperverg and Zabel, 2015], поэтому в этом параграфе мы ограничимся кратким изложением базовых принципов и последних достижений, связанных с использованием ларморовой прецессии аналогично методу спинового эха [Lauter et al, 2004; Toperverg et al., 2005].

#### 7.4.1. Зеркальное отражение поляризованных нейтронов

Магнитное взаимодействие обсуждалось в § 6.1 и было представлено в общем виде формулой (6.1.6). Далее мы рассматриваем тонкие магнитные пленки, в которых магнитная индукция  $\vec{B}$  есть сумма внешнего магнитного поля  $\vec{B}_0$  и намагниченности образца  $\vec{M}$ . Обычно магнитное поле прикладывается параллельно поверхности образца и из-за анизотропии формы вектор намагниченности располагается в плоскости пленки. В этом случае  $\vec{B}_0$  имеет одинаковые значения в образце и вне его, не дает вклад в контраст при отражении и поэтому в дальнейшем рассмотрении не учитывается. Даже если вектор  $\vec{B}_0$  имеет произвольное направление, а вектор намагниченности имеет нормальную к поверхности компоненту  $M_z$ , то ситуация не меняется, поскольку  $B_z$  является непрерывной функцией и тоже не дает контраст при магнитном отражении. Таким образом, при зеркальном отражении  $\vec{B}_0$  вклада не дает и можно учитывать только взаимодействие нейтронов с компонентой намагниченности вдоль поверхности.

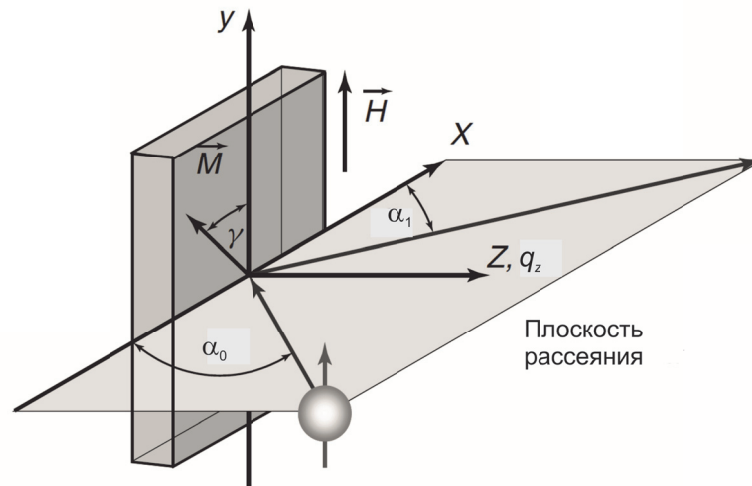


Рис. 7.4.1. Геометрия рассеяния в рефлектометрии поляризованных нейтронов [Zabel et al., 2007].

Схематическое изображение зеркального отражения дано на рис. 3.2.1 и рис. 7.4.1. Рассмотрим простейший случай, когда в  $z$ -направлении имеем полубесконечный однодоменный ферромагнитный образец с идеально плоской поверхностью. Падающий монохроматический пучок нейтронов идеально коллимирован и полностью поляризован по оси  $y$ , вдоль которой направлено внешнее магнитное поле. Пусть образец однородно намагничен также вдоль оси  $y$ .

Потенциальная энергия взаимодействия нейтронов с образцом содержит ядерную и магнитную части (6.3.1) и в пространстве спиновых состояний будет иметь матричную форму. В случае зеркального отражения она зависит только от поперечной координаты  $z$  (§ 3.2), поэтому сохраняется только латеральная (в плоскости) проекция  $\vec{k}$  волнового вектора  $\vec{k}$ , а двухкомпонентная волновая функция факторизуется:

$$|\psi(\vec{r})\rangle = \exp\{i\vec{k}\rho\} |\psi(z)\rangle, \quad |\psi(z)\rangle = \begin{pmatrix} \psi_+(z) \\ \psi_-(z) \end{pmatrix}, \quad (7.4.1)$$

где  $\rho$  – латеральная проекция радиус-вектора  $\vec{r}$ . Знак плюс (+) обозначает, что нейтрон поляризован по полю вдоль оси  $y$  (спин вверх), знак минус (–) – против поля (спин вниз).

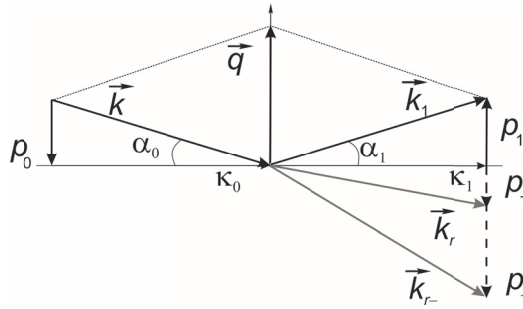


Рис. 7.4.2. Кинематика отражения поляризованных нейтронов.

Внешнее магнитное поле, малое по величине, называется ведущим полем. Компоненты двумерного вектора спиновых состояний имеют смысл амплитуд вероятности найти нейтрон в одном из состояний: с проекцией спина вверх (+) или вниз (–) по оси  $y$  (§ 7.1). Эволюция состояния нейтронов описывается у.Ш. (2.1.1), которое теперь преобразуется в систему двух связанных дифференциальных уравнений:

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \psi_+(z) + \left[ p_0^2 - \frac{2m}{\hbar^2} V_{++}(z) \right] \psi_+(z) - \frac{2m}{\hbar^2} V_{+-}(z) \psi_-(z) = 0, \quad (7.4.2)$$

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \psi_-(z) + \left[ p_0^2 - \frac{2m}{\hbar^2} V_{--}(z) \right] \psi_-(z) - \frac{2m}{\hbar^2} V_{-+}(z) \psi_+(z) = 0, \quad (7.4.3)$$



где  $p_0 = q_z/2 = k \sin \alpha$  – нормальная к поверхности образца компонента волнового вектора нейтрона,  $\alpha$  – угол падения пучка нейтронов на поверхность, как показано на рис. 7.4.2. Из инвариантности по отношению к латеральному сдвигу следует  $\kappa_1 = \kappa_0 = \kappa$ ,  $p_1 = p_0 = p$  и  $\alpha_1 = \alpha_0 = \alpha$ . По закону сохранения энергии при упругом рассеянии  $p_0^2 = k^2 - \kappa^2$ . На рис. 7.4.2 показано также зеэмановское расщепление нейтронного пучка в магнитной среде.

Матрица взаимодействия имеет вид:

$$\begin{pmatrix} V_{++} & V_{+-} \\ V_{-+} & V_{--} \end{pmatrix} = \frac{2\pi\hbar^2}{m} N \left[ \begin{pmatrix} b_n & 0 \\ 0 & b_n \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} b_y & b_x \\ b_x & -b_y \end{pmatrix} \right], \quad (7.4.4)$$

где  $b_N$  – ядерная длина рассеяния,  $b_x = b_M \sin \gamma$ ,  $b_M$  – магнитная длина рассеяния,  $\gamma$  – угол между вектором намагниченности и осью  $y$ ,  $b_y = b_M \cos \gamma$ . Из (7.4.4) следует, что диагональные элементы  $V_{++}$ ,  $V_{--}$  пропорциональны компонентам магнитной индукции, параллельным оси  $y$ :  $(b_N + b_y)$ ,  $(b_N - b_y)$ , соответственно. Они содержат вклады ядерного и магнитного взаимодействия. Недиagonalные элементы  $V_{+-}$ ,  $V_{-+}$  пропорциональны компонентам индукции, перпендикулярным оси поляризации  $b_x$ , они имеют чисто магнитную природу.

Если недиагональные элементы равны нулю (угол  $\gamma = 0$ , вектор намагниченности ориентирован вдоль оси  $y$ ), то система уравнений (7.4.2), (7.4.3) расщепляется и остается только рассеяние без переворота спина нейтрона (non-spin-flip, NSF), то есть нейтроны остаются в своем исходном состоянии после взаимодействия с образцом. Если диагональные элементы равны нулю, то взаимодействия  $V_{+-}$ ,  $V_{-+}$  переворачивают спин нейтрона из положения вверх в положение вниз и наоборот, соответственно, с одинаковой эффективностью. Это рассеяние с переворотом спина (spin-flip, SF) вызвано проекцией вектора намагниченности  $M_x$  вдоль оси  $x$ . Таким образом, разница между NSF и SF рассеянием дает  $x$ - и  $y$ -компоненты намагниченности  $\vec{M}$ .

Подчеркнем, что в рассматриваемой геометрии речь может идти об определении только величины компоненты  $M_x$ , но не направления. Другими словами, данные РПН не позволяют определить направление поворота вектора намагниченности относительно оси поляризации, что обусловлено равенством недиагональных элементов матрицы взаимодействия:  $V_{+-} = V_{-+}$ . Для определения всех компонент вектора намагниченности необходимы более полные методы, такие, как трехмерный или векторный метод анализа поляризации.

Уравнения (7.4.2), (7.4.3) были многократно и детально изучены [Felcher et al., 1987; Zabel et al., 2007; Torengverg, 2015], поэтому мы здесь, не вдаваясь в детали, приведем только результаты, необходимые для понимания принципов метода РПН. Схема решения уравнений (7.4.2) и (7.4.3) аналогична изложенной в § 3.2.2, но с соответствующими усложнениями, обусловленными матричным характером уравнений. В простейшем случае отражения от полубесконечной

среды решения системы уравнений (7.4.2) и (7.4.3) при  $z \leq 0$ , когда падающие нейтроны поляризованы, как показано на рис. 7.4.1, имеют вид:

$$\psi_+(z) = e^{ip_0z} + r_{++}e^{-ip_0z} \quad (7.4.5)$$

$$\psi_-(z) = r_{-+}e^{-ip_0z}. \quad (7.4.6)$$

Если нейтроны поляризованы против ведущего поля, то решения имеют вид:

$$\psi_+(z) = r_{+-}e^{-ip_0z} \quad (7.4.7)$$

$$\psi_-(z) = e^{ip_0z} + r_{--}e^{-ip_0z}. \quad (7.4.8)$$

В уравнения (7.4.5) – (7.4.8) входят *амплитуды отражения без переворота спина*  $r_{++}$ ,  $r_{--}$  и с переворотом спина  $r_{+-}$ ,  $r_{-+}$ , которые связаны с *матрицей отражения*  $\hat{R}$ :

$$\begin{pmatrix} r_{++} & r_{+-} \\ r_{-+} & r_{--} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R_+ \cos^2(\gamma/2) + R_- \sin^2(\gamma/2) & (R_+ - R_-) \cos(\gamma/2) \sin(\gamma/2) \\ (R_+ - R_-) \cos(\gamma/2) \sin(\gamma/2) & R_+ \sin^2(\gamma/2) + R_- \cos^2(\gamma/2) \end{pmatrix}. \quad (7.4.9)$$

Аналогично вводится *матрица пропускания*  $\hat{T}$ :

$$\begin{pmatrix} t_{++} & t_{+-} \\ t_{-+} & t_{--} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_+ \cos^2(\gamma/2) & T_- \sin(\gamma/2) \cos(\gamma/2) \\ T_+ \sin^2(\gamma/2) & -T_- \sin(\gamma/2) \cos(\gamma/2) \end{pmatrix} \quad (7.4.10)$$

Амплитуды отражения  $R_{\pm}$  и амплитуды пропускания  $T_{\pm}$  определяются формулами Френеля (ср. с (3.2.10) и (3.2.11)):

$$R_{\pm}^F = \frac{p_0 - p_{\pm}}{p_0 + p_{\pm}} = \frac{p_0 - \sqrt{p_0^2 - p_{c\pm}^2}}{p_0 + \sqrt{p_0^2 - p_{c\pm}^2}} \quad (7.4.11)$$

$$T_{\pm} = \frac{2p_0}{p_0 + p_{\pm}} = \frac{2p_0}{p_0 + \sqrt{p_0^2 - p_N^2 \mp p_M^2}}. \quad (7.4.12)$$

Поясним величины, входящие в эти формулы. Величина  $p_0$  определена после формулы (7.4.3).

$$p_{\pm} = p_0 + \sqrt{p_0^2 - p_N^2 \mp p_M^2}, \quad (7.4.13)$$

где  $p_N^2 = 4\pi N b_N$ ,  $p_M^2 = 4\pi N b_M$ . Уравнение (7.4.13) имеет весьма прозрачный физический смысл. Нейтронная волна с начальным волновым числом  $p_0$  испытывает преломление в магнитной среде, в результате чего снимается вырождение спиновых состояний. Этот эффект аналогичен двулучепреломлению в оптически активной среде благодаря эффекту Зеемана. Спиновые компоненты нейтронной волны в магнитном поле имеют разные фазовые скорости  $v_{\pm} = \hbar k_{\pm} / m_N$  ( $k_{\pm} = \sqrt{\kappa^2 + p_{\pm}^2}$  и поэтому разные показатели преломления (§ 7.3).

Соответственно, будет два критических волновых числа для полного отражения:

$$p_{c\pm} = \sqrt{p_N^2 \pm p_M^2} \quad (7.4.14)$$

и два критических угла  $\alpha_{c\pm}$ :

$$p_{c\pm} = k \sin \alpha_{c\pm} = \sqrt{4\pi N(p_N \pm p_M)}, \quad (7.4.15)$$

один для положительной, а другой для отрицательной проекций на направление магнитной индукции в среде. Волновые числа в среде и вне среды показаны на рис. 7.4.2.

Из выражения (7.4.11) следует, что, если  $p_0 \leq p_{c+}$ , то  $|R_+|=1$  и нейтроны с положительной проекцией спинов относительно магнитной индукции в образце будут испытывать полное отражение. Если  $p_0 \leq p_c \leq p_{c+}$ , то  $|R_-|=|R_+|=1$  и нейтроны противоположной ориентацией тоже будут испытывать полное отражение.

В общей схеме РПН измеряют независимо NSF коэффициенты отражения  $\mathcal{R}^{++}=|r_{++}|^2$ ,  $\mathcal{R}^{-}=|r_{-}|^2$  и SF коэффициенты отражения  $\mathcal{R}^{+-}=\mathcal{R}^{++}=|r_{\pm\mp}|^2$ , которые согласно (7.4.9) запишем в виде:

$$\mathcal{R}^{++} = \frac{1}{4} |R_+(1 + \cos \gamma) + R_-(1 - \cos \gamma)|^2 \quad (7.4.16)$$

$$\mathcal{R}^{-} = \frac{1}{4} |R_+(1 - \cos \gamma) + R_-(1 + \cos \gamma)|^2 \quad (7.4.17)$$

$$\mathcal{R}^{+-} = \mathcal{R}^{+} = \frac{1}{4} |R_+ - R_-|^2 \sin^2 \gamma \quad (7.4.18)$$

В упрощенной схеме РПН анализ конечных состояний спинов отраженных нейтронов не производят. Измеряемыми являются величины:

$$\mathcal{R}^{+} = \mathcal{R}^{++} + \mathcal{R}^{+-} = |R_+|^2 \cos^2(\gamma/2) + |R_-|^2 \sin^2(\gamma/2) \quad (7.4.19)$$

$$\mathcal{R}^{-} = \mathcal{R}^{-} + \mathcal{R}^{+-} = |R_+|^2 \sin^2(\gamma/2) + |R_-|^2 \cos^2(\gamma/2). \quad (7.4.20)$$

В этом случае величина

$$\frac{1}{2} \{ \mathcal{R}^{+} + \mathcal{R}^{-} \} = \frac{1}{2} \{ |R_+|^2 + |R_-|^2 \} = \mathcal{R}_0 \quad (7.4.21)$$

определяет коэффициент отражения  $\mathcal{R}_0$  неполяризованных нейтронов. Из последнего выражения видно, что потенциалы отражения ядерный и магнитный могут быть, в принципе, найдены и с помощью неполяризованных нейтронов. Действительно, кривая отражения  $\mathcal{R}(p_0)$  должна иметь два плато. Одно при  $p_{c-} \leq p_0 \leq p_{c+}$ , когда отражается половина неполяризованных нейтронов. Другая половина полностью отражается при  $p_0 \leq p_{c-}$ , когда  $\mathcal{R}_0 = 1$ .

Итак, поляризация не дает ничего нового, но позволяет определить независимо  $|R_+|$  и  $|R_-|$ . В частном случае  $\gamma=0$ , когда вектор поляризации коллинеарен намагниченности образца,

$$\mathcal{R}^{++} = \mathcal{R}^+ = |R_+|^2 \text{ и } \mathcal{R}^{--} = \mathcal{R}^- = |R_-|^2 \quad (7.4.22)$$

и  $\mathcal{R}^{+-} = \mathcal{R}^{-+} = 0$ .

В случае неколлинеарного расположения РПН позволяет определить ориентацию вектора намагниченности в плоскости образца по отношению к оси поляризации нейтронов, зафиксированной в лабораторной системе координат. Действительно, как видно из выражений (7.4.19) и (7.4.20), вклад положительной и отрицательной спиновой компонент в коэффициенты отражения  $\mathcal{R}^{+-}$  определяется углом  $\gamma$ . Рассмотрим разность

$$\mathcal{R}^+ - \mathcal{R}^- = \{|R_+|^2 - |R_-|^2\} \cos \gamma. \quad (7.4.23)$$

Видно, что она позволяет непосредственно определить угол  $\gamma$ . Для этого еще используют величину

$$SA = \frac{\mathcal{R}^+ - \mathcal{R}^-}{\mathcal{R}^+ + \mathcal{R}^-} = \frac{|R_+|^2 - |R_-|^2}{|R_+|^2 + |R_-|^2} \cos \gamma, \quad (7.4.24)$$

которая называется спиновой асимметрией.

#### 7.4.2. Прецессия при скользящем падении

Вектор поляризации  $\vec{P}$ , который мы использовали для общего описания в §§ 7.1, 7.2, невозможно напрямую извлечь из РПН, где измеряются SF и NSF интенсивности при той или иной конфигурации поляризатора и анализатора. Однако эти величины можно связать между собой с помощью формализма матрицы плотности, используя тот факт, что при прохождении через магнитное поле исходный спинор (7.1.2) преобразуется в спинор конечного состояния действием  $2 \times 2$  матрицы пропускания  $\hat{T}$  или отражения  $\hat{R}$ :  $|\psi_1\rangle = \hat{R}|\psi_0\rangle$ . Тогда вектор поляризации (7.1.16) можно записать в виде [Torperverg et al., 2005]:

$$2\vec{P} = \frac{\langle \psi_0 | \vec{\sigma} | \psi_0 \rangle}{\langle \psi_0 | \psi_0 \rangle} = \text{Tr}(\hat{\rho}_0 \hat{R}^+ \vec{\sigma} \hat{R}) / \text{Tr}(\hat{\rho}_0 \hat{R}^+ \hat{R}), \quad (7.4.25)$$

где спиновую матрицу плотности состояний падающего нейтрона согласно (7.1.15) запишем в виде:

$$2\hat{\rho}_0 = \frac{|\psi_0\rangle\langle\psi_0|}{\langle\psi_0|\psi_0\rangle} = 1 + \vec{P}_0 \vec{\sigma}, \quad (7.4.26)$$

Матрица плотности конечных состояний имеет аналогичный вид :

$$2\hat{\rho}_1 = \frac{|\psi_1\rangle\langle\psi_1|}{\langle\psi_1|\psi_1\rangle} = 1 + \vec{P}_1 \vec{\sigma}, \quad (7.4.27)$$

Здесь вектор поляризации  $\vec{P}_1$  играет роль анализатора поляризации. Коэффициент отражения определяется выражением:

$$2\mathcal{R} = \langle \psi_1 | \hat{R} | \psi_0 \rangle^* \langle \psi_1 | \hat{R} | \psi_0 \rangle = \text{Tr}(\hat{\rho}_0 \hat{R}^+ \rho_1 \hat{R}), \quad (7.4.28)$$

Матрица амплитуд отражения может быть представлена в виде

$$2\hat{R} = (R_+ + R_-) + \vec{b} \vec{\sigma} [R_+ - R_-]. \quad (7.4.29)$$

В предыдущем разделе мы рассматривали только абсолютные значения амплитуд рассеяния и пропускания. В общем случае волновая функция, а, следовательно, и зависящие от нее величины должны иметь зависимость от фазы волновой функции. Так, амплитуды отражения  $R_{\pm}$ , которые являются комплексными собственными значениями матрицы  $R$ , должны быть представлены в виде:

$$R_{\pm} = |R_{\pm}| \exp(i\chi_{R_{\pm}}), \quad (7.4.30)$$

где  $\chi_{R_{\pm}}$  – соответствующие фазовые сдвиги определяются волновыми числами (7.4.13),  $z_0$  – толщина пленки.

Из вышеприведенных формул следуют уравнения для проекций вектора поляризации  $\vec{P}$  и для коэффициента отражения  $\mathcal{R}$ :

$$P^{\alpha} = [\Omega_R^{\alpha\beta} P_i^{\beta} + b^{\alpha} \mathcal{P}_R] / [\mathcal{R}_0 + \mathcal{P}_R (\vec{b} \vec{P}_i)], \quad (7.4.31)$$

$$\mathcal{R} = \frac{1}{2} \{ \mathcal{R}_0 + \mathcal{P}_R b^{\alpha} (P_i^{\alpha} + P_f^{\alpha}) + \Omega_R^{\alpha\beta} P_i^{\alpha} P_f^{\beta} \}, \quad (7.4.32)$$

где введены обозначения:

$$\mathcal{P}_R = [ |R_+|^2 - |R_-|^2 ] / 2, \quad (7.4.33)$$

$$\mathcal{R}_0 = [ |R_+|^2 + |R_-|^2 ] / 2, \quad (7.4.34)$$

Выражение (7.4.30) отличается выражений (7.2.9) и (7.2.11) наличием члена  $\vec{P}_R = \mathcal{P} \vec{b}$ , который имеет квантовую природу и происходит из-за различия  $\mathcal{P}_R$  в отражении разных спиновых компонент, что не учитывается в классической схеме § 7.2. Матрица вращения (7.4.30) и (7.4.31) аналогична матрице (7.2.11) и содержит три ортогональных члена:

$$\Omega_R^{\alpha\beta} = \{ b^{\alpha} b^{\beta} \mathcal{R}_0 + [ (\delta^{\alpha\beta} - b^{\alpha} b^{\beta}) \cos \Phi_R - \varepsilon^{\alpha\beta\gamma} b^{\gamma} \sin \Phi_R ] |R_+ R_-| \}. \quad (7.4.35)$$

В противоположность (7.2.11) эта матрица не просто вращает вектор поляризации падающего пучка вокруг магнитного поля на угол  $\Phi_R = (\chi_+ - \chi_-)$ , но также изменяет его длину благодаря множителям  $\mathcal{R}_0$  и  $R_{\pm}$ . В результате интенсивность отраженного (и прошедшего) пучка может иметь довольно сложную зависимость от длины траектории, величины магнитного поля и длины волны нейтронов.

В большинстве экспериментов по РПН вектор поляризации падающего пучка  $\vec{P}_0$  направлен коллинеарно к вектору намагниченности  $\vec{M}$ . Тогда из-за эффекта Зеемана расщепления пучка в магнитном поле  $\vec{B} = 4\pi\vec{M}$  наблюдается два критических угла полного отражения с сопутствующим переворотом спина. Этот эффект легко наблюдаем, когда оптические потенциалы как для положительной, так и отрицательной проекций спинов больше оптического потенциала подложки и если пленка достаточно толстая.

Если вектора  $\vec{P}_0$  и  $\vec{M}$  не коллинеарны, то отражение может иметь более сложное поведение, связанное, в частности, с вращением вектора поляризации  $\vec{P}$  отраженных нейтронов относительно вектора  $\vec{b}$ . Амплитуды отражения от магнитной пленки (1) на немагнитной подложке (s) имеет вид:

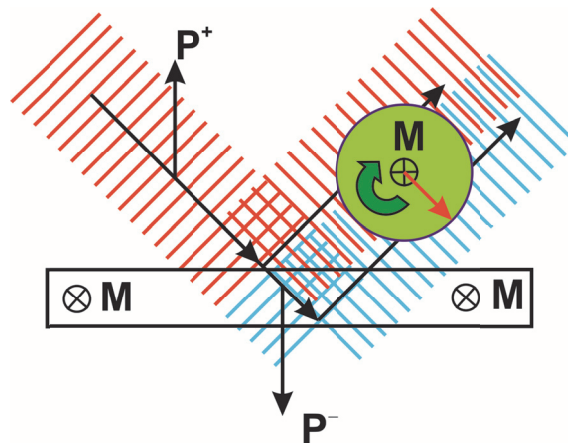
$$R_{\pm} = \frac{R_{1\pm} + R_{s\pm} e^{2i\varphi_{\pm}}}{1 + R_{1\pm} R_{s\pm} e^{2i\varphi_{\pm}}} \quad (7.4.36)$$

с соответствующими амплитудами Френеля для отражения (7.4.11):

$$R_{1\pm} = (p_0 - p_{\pm}) / (p_0 + p_{\pm}), \quad R_{s\pm} = (p_{\pm} - p_s) / (p_{\pm} + p_s) \quad (7.4.37)$$

где  $p_s = \sqrt{p_0^2 - p_c^2}$ ,  $p_c$  – критическое волновое число для потенциала подложки.

Рассмотрим относительно простой случай неколлинеарности, когда направление поляризации падающего нейтронного пучка перпендикулярно поверхности образца и его намагниченности, как показано на рис. 7.4.3.



**Рис. 7.4.3.** Схематическое представление эффекта ларморовской псевдопрецессии при отражении поляризованного монохроматического пучка нейтронов от магнитной пленки.

Процесс, схематически показанный на рис. 7.4.3, может быть описан следующим образом. Нейтронный пучок, имеющий одну компоненту спина, падает на плоскую поверхность образца. Начальный вектор поляризации нейтронов  $P^+$  располагается в плоскости рисунка перпендикулярно вектору намагниченности  $M$  пленки. На границе раздела «вакуум – образец» начальная компонента спина испытывает зеемановское расщепление, вследствие чего образуется две противоположные компоненты спина. Затем одна из них полностью отражается от поверхности образца (показано красным цветом), в то время как другая проходит внутрь (показано зеленым) и полностью отражается от границы раздела «пленка – подложка». В уходящем пучке эти две компоненты спина интерферируют. Результатом этой интерференции является эффективное

вращение вектора поляризации вокруг направления вектора намагниченности в образце.

Рассмотрим конкретный случай, когда пленка помещена на подложку, чей ядерный оптический потенциал близок к потенциалу пленки для нейтронов с проекцией спина на вектор  $\vec{b}$ , в то время как потенциал отражения для другой проекции спина близок к нулю. Если  $p_- \approx p_0$ ,  $p_+ \approx p_s$ , то из (7.4.36) – (7.4.37) следует, что  $R_+ \approx e^{i\chi_s}$  и  $R_- \approx e^{i(2\varphi_0 + \chi_s)}$ , где  $\varphi_0 = p_0 z_0$ . Это означает, что разность фаз в экспонентах  $\chi_{R+} - \chi_{R-} = 2\varphi_0$  и угол прецессии  $\varphi_R = 2\varphi_0 = (4\pi d/\lambda) \cdot \sin \alpha_0$ , в отличие от ларморовой прецессии, прямо пропорционален волновому вектору, или скорости нейтрона, а период осцилляций соответствует толщине пленки. Такой вид прецессии вектора поляризации был назван ларморовой псевдопрецессией (ЛПП) [Torgerverg et al., 2005].

Характерные условия для наблюдения эффекта ларморовой псевдопрецессии при отражении от магнитного образца могут быть записаны в форме:

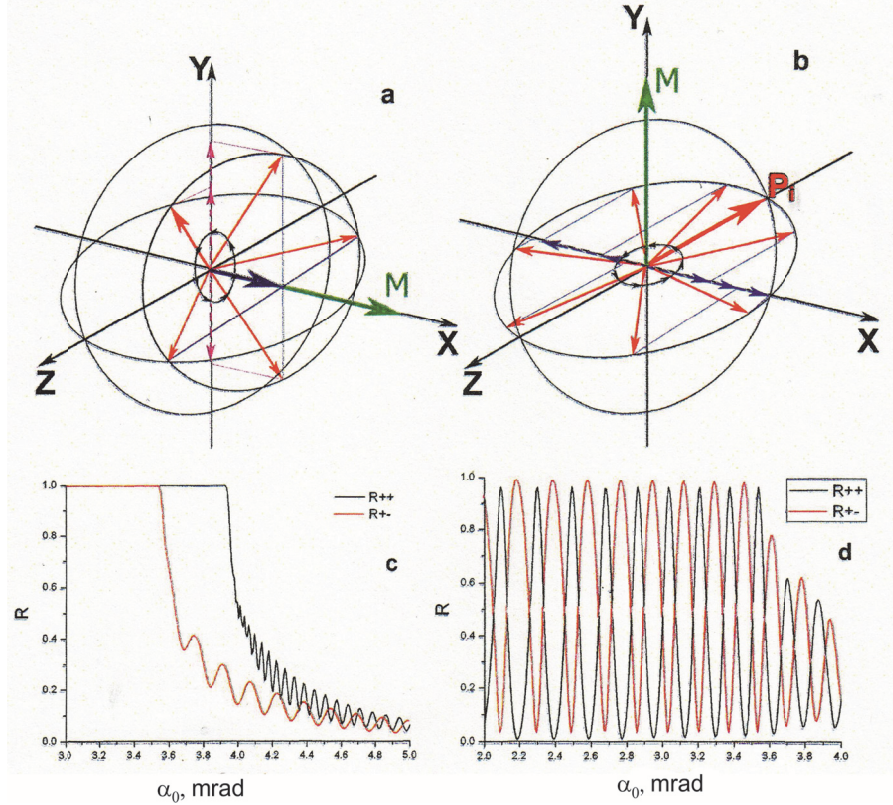
$$\begin{aligned} Nb^+ &= Nb_N + Nb_M \sim Nb_s \\ Nb^- &= Nb_N - Nb_M \sim Nb_{air} = 0 \end{aligned} \quad (7.4.38)$$

На рис. 7.4.4 показаны результаты численных расчетов для описанной здесь ситуации на примере пленки  $^{57}\text{Fe}$  толщиной  $d = 1$  мкм, помещенной на сапфировую подложку. Ядерная плотность длины рассеяния пленки  $^{57}\text{Fe}$  равна  $Nb_N = 1.97 \cdot 10^{-8} \text{ нм}^{-2}$ , магнитная часть –  $Nb_M = 4.98 \cdot 10^{-8} \text{ нм}^{-2}$ , плотность длины рассеяния сапфировой подложки  $Nb_s = 5.695 \cdot 10^{-8} \text{ нм}^{-2}$ . Таким образом, условие (7.4.38) выполняется. Отрицательное значение  $Nb^-$  свидетельствует о том, что критическое значение переданного импульса  $Q_c$  есть мнимое число, поэтому критический угол не наблюдается для нейтронов, поляризованных в направлении, противоположном вектору намагниченности образца.

На рис. 7.4.4а вектор поляризации падающего пучка параллелен направлению намагниченности анализатора, что является стандартной геометрией в рефлектометрии. Расчетные кривые коэффициентов отражения  $R^{++}$  и  $R^{--}$  показаны на рис. 7.4.4с. В данной геометрии эксперимента величина проекции вектора поляризации (синий вектор) на направление намагниченности анализатора (ось  $X$ ) постоянна. Значение критического угла кривой коэффициента отражения  $R^{++}$  (черная кривая) соответствует сумме ядерной и магнитной частей ПДР. Значение критического угла для кривой  $R^{+-}$  (красная кривая) соответствует ядерной части ПДР сапфировой подложки. Это обусловлено тем, что нейтроны с перевернутым спином взаимодействуют с ПДР, которая равна разности ядерной и магнитной частей ПДР пленки; для пленки  $^{57}\text{Fe}$  это значение меньше нуля, поэтому критический угол имеет мнимое значение.

Ситуация меняется, когда направление намагниченности анализатора ( $\vec{P}_1$ ) перпендикулярно вектору намагниченности пленки. Эта геометрия показана на

рис. 7.4.4.b. В этом случае прецессия вектора поляризации  $\vec{P}_0$  происходит в плоскости  $XZ$  вокруг оси  $Y$ , то есть вокруг вектора  $\vec{M}$ . Теперь величина проекции вектора  $\vec{P}_1$  на ось  $X$  изменяется (см. рис. 7.4.4b, показано синими стрелками различной длины). Расчетные кривые  $R^{++}$  и  $R^{-}$  представлены на рис. 7.4.4d, на которых видны гармонические осцилляции внутри области полного отражения.



**Рис. 7.4.4.** Взаимная ориентация вектора намагниченности  $\vec{M}$  в образце, вектора падающей поляризации  $\vec{P}_0$  и направления намагниченности анализатора: а) вектор намагниченности  $\vec{M}$  параллелен оси  $X$ , б) вектор  $\vec{M}$  параллелен оси  $Y$ . Направление намагниченности анализатора  $P_1$  в обоих случаях вдоль оси  $X$ . с) и d) коэффициенты отражения (черные кривые – кривые отражения нейтронов без переворота спина, красные – с переворотом спина), рассчитанные для пленки  $^{57}\text{Fe}$  толщиной  $d = 1$  мкм, нанесенной на сапфировую подложку, для случаев а) и б) соответственно. [Жерненков и др., 2008].

Первый эксперимент по обнаружению вращения вектора поляризации вокруг вектора намагниченности был продемонстрирован в статье [Velthuis et al., 2001]. Позднее, теоретическое описание ЛПП, подтвержденное экспериментом на пленке  $^{57}\text{Fe}$ , было выполнено [Toperverg et al., 2005], а также были произведены эксперименты [Jernpenkov et al., 2006] по прямому доказательству существования



эффекта ЛПП вектора поляризации нейтронов и определению намагниченности пленок при помощи этого эффекта. Результаты этих экспериментов открыли возможность реализовать на практике новый метод по определению распределения намагниченности в магнитных тонких пленках и магнитных многослойных структурах.

### § 7.5. Стоячие волны при полном отражении

В 2000 г. в Дубне впервые было показано [Аксенов и др., 2000], что при полном отражении поляризованных тепловых нейтронов образуются стоячие волны в заданном спиновом состоянии (с проекцией спина вдоль или против магнитного поля). Регистрация такого состояния может быть осуществлена с помощью переворота спина нейтронов в магнитно-неколлинеарном слое – детектируются нейтроны, изменившие спиновое состояние (§ 7.3.2).

Рассмотрим картину формирования *стоячих нейтронных волн* (СНВ) при полном внешнем отражении нейтронов. Оптический потенциал когерентного взаимодействия нейтрона с веществом в зависимости от координаты содержит три области (рис. 7.5.1): в первой области происходит преобразование нейтронной волны с изменением амплитуды и фазы, во второй области – сдвиг фазы нейтронной волны, и в третьей – отражение нейтронной волны. Для краткости будем называть эти области соответственно преобразователем, областью  $\Phi$  и отражателем. Пусть падающая из вакуума нейтронная волна в фиксированном спиновом состоянии (с проекцией спина по направлению магнитного поля или против) является плоской волной  $\vec{\psi}_0$  (символом  $\leftarrow$  обозначается направление падающей волны, символом  $\rightarrow$  – обратное направление).

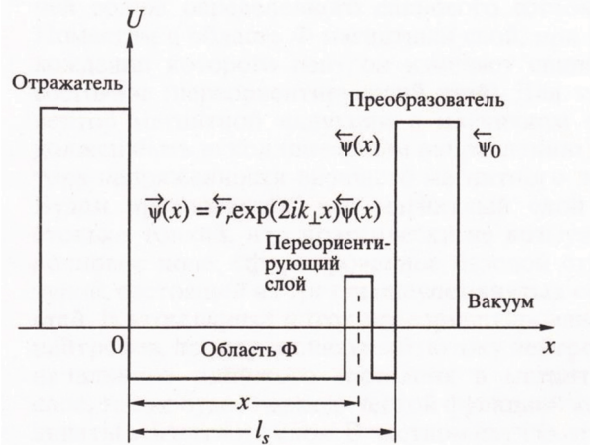


Рис. 7.5.1. Схема оптического потенциала при генерации стоячей нейтронной волны в условиях полного отражения.

После прохождения преобразователя в области  $\Phi$  распространяется нейтронная волна  $\vec{\psi}(x)$ :

$$\vec{\psi}(x) = \vec{t}_i \exp[ik_{\perp}(l_s - x)] \vec{\psi}_0 / (1 + \vec{r}_i \vec{r}_r \exp(2ik_{\perp}l_s)), \quad (7.5.1)$$

где  $x$  – расстояние от отражателя,  $l$  – протяженность области  $\Phi$ ,  $k_{\perp} = (2\pi/\lambda_{\perp}) [1 - (\lambda_{\perp}/\lambda_t)^2]^{1/2}$  – перпендикулярная к границам раздела слоистой структуры компонента волнового вектора нейтрона,  $\lambda_{\perp} = \lambda/\sin(\theta)$ ,  $\lambda$  – длина волны нейтрона,  $\theta$  – угол скольжения,  $\lambda_t = (\beta U_s)^{-1}$  – граничное значение длины волны нейтрона в области  $\Phi$  в направлении движения перпендикулярно к границам раздела,  $U_s$  – оптический потенциал области  $\Phi$ ,  $\beta = 2m_n/\hbar^2$ ,  $\vec{t}_i$  – амплитуда прохождения преобразователя,  $\vec{r}_i$ ,  $\vec{r}_r$  – амплитуды отражения нейтрона от преобразователя и от отражателя соответственно.

В обратном направлении распространяется волна  $\vec{\psi}(x)$ :

$$\vec{\psi}(x) = \vec{r}_r \exp(2ik_{\perp}x) \vec{\psi}(x). \quad (7.5.2)$$

Волны  $\vec{\psi}(x)$  и  $\vec{\psi}(x)$  интерферируют. В результате нейтронный поток  $J(x) = \text{Re}(v_s) |\psi(x)|^2 = \vec{\psi}(x) + \vec{\psi}(x)$ , где  $\text{Re}(v_s)$  – реальная компонента скорости нейтрона в области  $\Phi$ , оказывается функцией длины волны  $\lambda$  и координаты  $x$ :

$$J(x) = \text{Re}(v_s) |\vec{t}_i|^2 \left[ (1 - |\vec{r}_r|^2) + 4|\vec{r}_r|^2 \cos^2 \{(\phi(\vec{r}_r) + 2k_{\perp}x/2)\} \right] / \left[ (1 - |\vec{r}_i||\vec{r}_r|)^2 + 4|\vec{r}_i||\vec{r}_r| \sin^2 \{2k_{\perp}l_s + \phi(\vec{r}_r) + \phi(\vec{r}_i)\}/2 \right] |\vec{\psi}_0|^2, \quad (7.5.3)$$

где  $\phi(\vec{r}_r)$  и  $\phi(\vec{r}_i)$  – фазы амплитуд отражения  $\vec{r}_r$  и  $\vec{r}_i$ , соответственно. Из (7.5.3) видно, что пространственный период СНВ в области  $\Phi$  определяется выражением:

$$T_x = \pi/k_{\perp} = (\lambda_{\perp}/2) [1 - (\lambda_{\perp}/\lambda_t)^2]^{1/2}. \quad (7.5.4)$$

При полном отражении модуль амплитуды отражения  $|\vec{r}_r| = 1$ , а нейтронный поток  $J(x)$  принимает вид:

$$J(x) = A \cos^2 \{(\phi(\vec{r}_r) + 2k_{\perp}x/2)\} / \left[ (1 - |\vec{r}_i|)^2 + 4|\vec{r}_i| \sin^2 \{2k_{\perp}l_s + \phi(\vec{r}_r) + \phi(\vec{r}_i)\}/2 \right] |\vec{\psi}_0|^2, \quad (7.5.5)$$

где  $A = 4 \text{Re}(v_s) |\vec{t}_i|^2$ .

Из (7.5.5) видно, что поток сложным образом зависит от длины волны. Далее мы будем рассматривать случай, когда интерференция в преобразователе отсутствует, а  $|\vec{t}_i|$  и  $|\vec{r}_i|$  являются гладкими функциями длины волны в заданном

интервале. Это выполняется при условии, что протяженность преобразователя  $l_t$  значительно меньше протяженности  $l_s$  области  $\Phi$ . В этом случае, как видно из (7.5.5), плотность потока при заданной координате  $x$  будет возрастать для длин волн, удовлетворяющих условию интерференции падающей и отраженной от отражателя волн:

$$[\phi(\vec{r}_r) + 2k_{\perp}x]/2 = n_a\pi, \quad (7.5.6)$$

где  $n_a$  – порядок интерференции падающей и отраженной волн,  $-\pi/2 \leq \phi(\vec{r}_r) \leq 0$  для интервала  $\lambda_1 \leq \lambda \leq \infty$ .

Плотность потока в области  $\Phi$  возрастает также для длин волн, удовлетворяющих условию интерференции волн, отраженных от преобразователя и отражателя:

$$[2k_{\perp}l_s + \phi(\vec{r}_r) + \phi(\vec{r}_t)]/2 = n_r\pi, \quad (7.5.7)$$

где  $n_r$  – порядок интерференции отраженных волн.

Введем фактор усиления нейтронной плотности  $\eta$ , обусловленный интерференцией отраженных волн:

$$\eta = (J/J|\vec{r}_t|=0, |\vec{r}_t|=1) = |\vec{t}_t|^2 / \left[ (1-|\vec{r}_t|^2) + 4|\vec{r}_t| \sin^2 \{2k_{\perp}l_s + \phi(\vec{r}_r)\}/2 \right]. \quad (7.5.8)$$

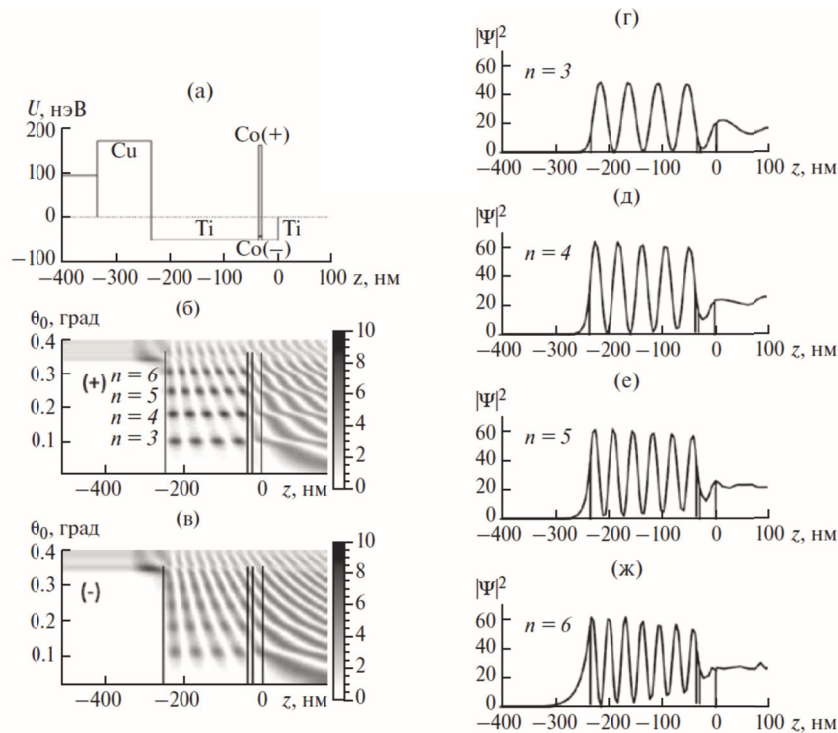
Максимальное значение фактора усиления  $\eta_{\max}$  достигается как раз при выполнении условия (7.5.7):

$$\eta_{\max} = |\vec{t}_t|^2 / (1-|\vec{r}_t|^2)^2. \quad (7.5.9)$$

Из (7.5.9) следует, что  $\eta_{\max} \geq 1$  при  $|\vec{t}_t| \geq 1-|\vec{r}_t|$ . В случае симметричного и не поглощающего нейтроны преобразователя, когда  $|\vec{t}_t| = (1-|\vec{r}_t|^2)^{1/2}$ , условие  $\eta_{\max} \geq 1$  выполняется всегда. Для реальных структур максимальное значение  $\eta_{\max}$  ограничено поглощением нейтронов. Оценки показывают, что вполне достижимым является значение  $\eta_{\max}$  порядка нескольких сотен.

Рассмотрим теперь метод наблюдения волнового поля, характеризующегося образованием стоячей волны определенного спинового состояния. Поместим в область  $\Phi$  магнитный слой, при прохождении которого нейтрон изменяет спиновое состояние (переориентирующий слой). Для этого вектор магнитной индукции в магнитном слое должен быть неколлинеарным направлению вектора напряженности внешнего магнитного поля. Будем предполагать, что магнитный слой настолько тонкий, что практически не возмущает волновое поле, сформированное базовой структурой, состоящей из трех вышеупомянутых областей. В этом случае поток переориентированных нейтронов, пропорциональный потоку нейтронов начального спинового состояния в магнитном слое, также будет периодической функцией координаты

магнитного слоя. В частном случае отсутствия преобразователя, когда  $|\vec{t}_t|=1$ , режим усиления стоячих волн отсутствует. В этом случае стоячая волна проявляется через периодическую зависимость потока переориентированных нейтронов от длины волны нейтрона. Регистрация переориентированных нейтронов в общем случае может быть осуществлена измерением соответствующих коэффициентов отражения  $R_{+(-),-(+)}$  и пропускания  $T_{+(-),-(+)}$  нейтронов. При полном отражении нейтронов коэффициенты пропускания равны нулю и достаточно измерить только коэффициенты отражения.



**Рис. 7.5.2.** Расчёты для стоячих нейтронных волн при фиксированной длине волны нейтронов 4.0 Å. (а) Нейтронно-оптический потенциал образца Ti(30 нм)/Co(6)/Ti(200)/Cu(100)//стекло (подложка). Плотность волновой функции нейтронов в зависимости от угла скольжения начального пучка и координаты  $z$  перпендикулярно поверхности образца: (б) спин (+); (в) спин (-). Плотность волновой функции нейтронов в зависимости от координаты  $z$  для различных порядков резонансов: (г)  $n = 3$ ; (д)  $n = 4$ ; (е)  $n = 5$ ; (ж)  $n = 6$  [Кожевников и др., 2018].

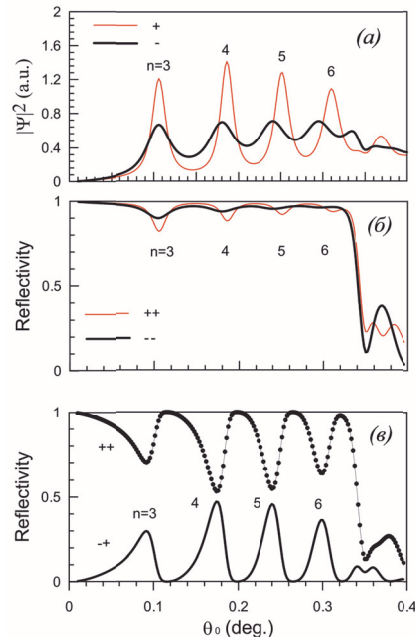
На рис. 7.5.2. приведены результаты расчетов распределения вероятностей значений координат  $|\Psi|^2$  (плотности нейтронного поля) для конкретной реализации схемы оптического потенциала, показанного на рис. 7.5.1. Образцом является тонкая плёнка Ti(30нм)/Co(6)/Ti(200)/Cu(100)//стекло (подложка). Оптический потенциал взаимодействия нейтронов с веществом имеет вид

потенциальной ямы (рис. 7.5.2а). Нейтроны туннелируют через верхний тонкий слой Co и отражаются от нижнего слоя Cu. В среднем слое Ti (200 нм) плотность волновой функции нейтронов резонансно усиливается благодаря многократному отражению нейтронов от верхнего и нижнего слоя с высоким потенциалом. Условия резонанса определяются фазовым соотношением:

$$\gamma(k_{0z}) = 2k_{2z}d + \arg(R_{21}) + \arg(R_{23}) = 2\pi n, \quad (7.5.10)$$

где  $k_{2z}$  – перпендикулярная поверхности образца компонента волнового вектора внутри резонансного слоя Ti (200 нм);  $d=200$  нм – толщина резонансного слоя Ti;  $R_{21}$  и  $R_{23}$  – амплитуды отражения нейтронов внутри слоя Ti соответственно от верхнего (туннелирующего) слоя Co и от нижнего слоя Cu (отражателя);  $n = 0, 1, 2, \dots$  – порядковый номер резонансов.

На рис. 7.5.2б и 7.5.2в показана рассчитанная плотность волновой функции нейтронов вдоль координаты  $z$  для разных углов скольжения начального пучка соответственно для спина (+) и (-). Фиксированная длина волны равна 4 Å. На рис. 8в – ж показана плотность волновой функции нейтронов спинового состояния (+) в резонаторе в зависимости от координаты  $z$  для порядков резонансов  $n = 3, 4, 5, 6$ . Можно видеть соответственно 4, 5, 6 и 7 максимумов.



**Рис. 7.5.3.** Расчёты для стоячих нейтронных волн с длиной волны 4.0 Å в образце Ti(30 нм)/Co(6)/Ti(200)/Cu(100)//стекло (подложка) в зависимости от угла скольжения падающего пучка. (а) Плотность волновой функции нейтронов для спина (+) и (-). (б) Коэффициенты отражения (++) и (--) для поля 150 Э, приложенного параллельно плоскости образца. (в) Коэффициенты отражения (++) и (-+) для поля 150 Э, приложенного под углом 80° к плоскости образца [Кожевников и др., 2018].

Суммированная по координате  $z$  плотность волновой функции нейтронов со спином (+) и (-) в зависимости от угла скольжения начального пучка приведена на рис. 7.5.3а. Можно видеть максимумы, соответствующие резонансам  $n = 3, 4, 5, 6$ . Плотность волновой функции нейтронов для спина (+) гораздо выше, чем для спина (-). Причина в том, что оптический потенциал слоя Cu для спина (+) гораздо выше, чем для спина (-), как показано на рис. 7.5.2а.

Рассчитанные коэффициенты отражения во внешнем магнитном поле (150 Э), параллельном поверхности образца, показаны на рис. 7.5.3б. В этом случае коэффициенты отражения с переворотом спина равно нулю. Минимумы на плато полного отражения коэффициентов без переворота спина  $R^{++}$  и  $R^{--}$  соответствуют усилению поглощения нейтронов в резонансном слое при формировании стоячих волн. На рис. 7.5.3в приведены рассчитанные коэффициенты отражения  $R^{++}$  и  $R^{+-}$  для внешнего магнитного поля 150 Э, приложенного под углом  $80^\circ$  к плоскости образца. Минимумы на коэффициенте отражения без переворота спина нейтронов возникают из-за процессов переворота спина нейтронов, которые усиливаются при формировании стоячих нейтронных волн. Они соответствуют максимумам на коэффициенте отражения с переворотом спина нейтронов.

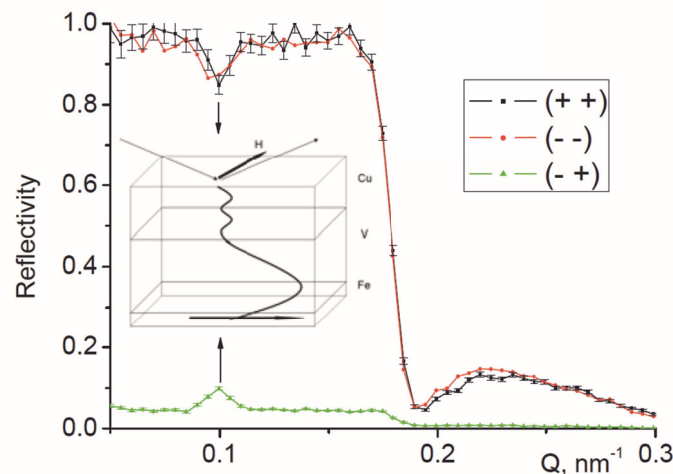


Рис. 7.5.4. Коэффициент отражения без переворота спина  $R^{++}$  и  $R^{--}$  и с переворотом для тонкой пленки Cu/V/Fe (см. текст) [Aksenov et al., 2010].

На рис. 7.5.4 показаны экспериментальные зависимости коэффициентов отражения без переворота  $R^{++}$  и  $R^{--}$  и с переворотом  $R^{+-}$ , полученные методом нейтронных стоячих волн при изучении магнитных состояний, формируемых в результате эффекта близости в структуре сверхпроводник/ферромагнетик. Изучалась структура Cu(33 нм)/V(40 нм)/Fe(1 нм)/MgO. Обнаружено подавление магнетизма в слое железа при переходе V в сверхпроводящее состояние.

Отметим, что метод стоячих нейтронных волн в режиме полного отражения весьма эффективен в случаях слабого магнитного сигнала, не регистрируемого обычными методами и предназначен для прецизионных измерений. Прецизионность метода обусловлена расщеплением падающего пучка нейтронов, при котором разделяются компоненты без поворота (зеркальное отражение, specular) и с поворотом спина нейтронов (незеркальное отражение, off-specular). При этом в несколько раз возрастает отношение эффект/фон. В следующем разделе рассмотрим подробнее эффекты расщепления пучка нейтронов.

### § 7.6. Рассеяние поляризованных нейтронов в магнетиках

Основные теоретические представления для анализа экспериментов по рассеянию поляризованных нейтронов в настоящее время хорошо разработаны [Абов и др., 1966; Изюмов и Черноплеков, 1983; Williams, 1988; Окорок, 1995; Малеев, 2002]. Здесь мы ограничимся выводом в самом общем виде основных формул, которые можно использовать для конкретных расчетов при интерпретации экспериментальных данных, а также качественным обсуждением возможностей, которые дает рассеяние поляризованных нейтронов в магнитных материалах. В основе излагаемой теории лежит борновское приближение и формализм корреляционных функций (см. главы 4 и 5). Применение борновского приближения не всегда возможно, как например, в случае дифракции на больших монокристаллах [Sears, 1989] или в случае рассеяния при скользящем падении [Torverg, 2002; 2015]. Обсуждение этой темы мы отложим до следующей главы.

#### 7.6.1. Неупругое и упругое рассеяние

Как было показано в предыдущей главе (§ 6.3), амплитуда рассеяния нейтронов в магнитной среде может быть представлена в виде суммы ядерной  $N(\vec{q})$  и магнитной  $F(\vec{q})$  амплитуд рассеяния:

$$A(\vec{q}) = N(\vec{q}) + F(\vec{q}). \quad (7.6.1)$$

Когда у ядер есть спин, амплитуда ядерного рассеяния состоит из двух составляющих – первая определяется чисто ядерным взаимодействием, а вторая пропорциональна произведению спинов нейтрона и ядра. Если ядра не поляризованы, вторая составляющая дает слабо зависящий от переданного импульса некогерентный фон. При исследовании магнетиков этим фоном обычно пренебрегают. Поэтому амплитуда ядерного рассеяния принимает вид:

$$N = N^{-1/2} \sum_n b_n \exp(i\vec{q}\vec{R}_n), \quad (7.6.2)$$

где  $R_n$  и  $b_n$  – координата и длина рассеяния  $n$ -го ядра в мишени,  $N$  – полное число ядер. Амплитуду магнитного рассеяния запишем в виде:

$$F(\vec{q}) = \vec{\sigma} \vec{M}_\perp(\vec{q}). \quad (7.6.3)$$

где  $\vec{M}_\perp$  – оператор поперечной намагниченности (6.2.16),  $\vec{\sigma}$  – матрицы Паули (7.1.1).

Подчеркнем, что изложение этого параграфа не связано с особенностями конкретной физической системы, но основано на общих принципах статистической механики и алгебре матриц Паули с использованием выражений (7.6.1) – (7.6.3). Поэтому конкретный их вид, вообще говоря, не имеет значения. Важно только, что функции  $N(\vec{q})$  и  $F(\vec{q})$  в (7.6.1) являются операторами, действующими на физические параметры мишени, и поэтому при вычислениях надо пользоваться соответствующими матричными элементами этих операторов.

Согласно общей теории, дважды дифференциальное сечение рассеяния представим в виде:

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega dE_f} \right)_{n,\nu} = \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k_f}{k_i} \int_{-\infty}^{\infty} dt (A^+(t) A(0))_{m,n,\mu,\nu}. \quad (7.6.4)$$

где  $i$  и  $f$  начальное и конечное состояния мишени,  $\nu$  и  $\mu$  проекции спина нейтрона до и после рассеяния. Напомним, что при получении экспериментально наблюдаемого сечения рассеяния проводится усреднение по всем начальным состояниям мишени  $n$  и начальным проекциям спина  $\nu$ , а также суммирование по всем конечным состояниям  $m$  и  $\mu$ . В выражении (7.6.4) остается провести усреднение по начальным состояниям мишени  $n$  и спиновым состояниям падающего нейтронного пучка. Состояние системы предполагается эргодическим (см. § 4.4). Тогда усреднение выполняется с использованием распределения Гиббса.

Усреднение по спиновым состояниям производится по правилам алгебры матриц Паули (§ 7.1) с заменой линейного по  $\sigma_\alpha$  члена:  $\sigma_\alpha \rightarrow P_{0\alpha}$ , где  $P_0$  – поляризация падающих нейтронов. В нашем случае эта процедура для произведения  $A^+A$  в (7.6.4) дает:

$$\begin{aligned} A^+A &= (A^+ + \vec{M}_\perp^+ \vec{\sigma}) (A + \vec{M}_\perp) \rightarrow \\ &\rightarrow N^+ N (\vec{M}_\perp + N + N^+ \vec{M}_\perp) \vec{P}_0 + \vec{M}_\perp^+ \vec{M}_\perp + i [\vec{M}_\perp \times \vec{M}_\perp] \vec{P}_0. \end{aligned} \quad (7.6.5)$$

При выводе этого выражения была использована эрмитовость матриц Паули:  $\vec{\sigma}^+ = \vec{\sigma}$ , равенство:  $\sigma_\alpha \sigma_\beta = \delta_{\alpha\beta} + i\sigma_{\alpha\beta\gamma} \sigma_\gamma$  и представление векторного произведения:  $[\vec{a} \times \vec{b}] = \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} a_\beta b_\gamma$ . Подставляя (7.6.5) в (7.6.4), получаем сечение рассеяния в виде четырех слагаемых:

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega d\omega} &= \frac{k_f}{k_i} \left\{ \langle N^+(\vec{q}) N(\vec{q}) \rangle_\omega + \langle \vec{M}_\perp^+(\vec{q}) \vec{M}_\perp(\vec{q}) \rangle_\omega + \right. \\ &\left. + \vec{P}_0 \langle \vec{M}_\perp^+(\vec{q}) N(\vec{q}) + N^+(\vec{q}) \vec{M}_\perp(\vec{q}) \rangle_\omega + i \vec{P}_0 \langle [\vec{M}_\perp^+(\vec{q}) \times \vec{M}_\perp(\vec{q})] \rangle_\omega \right\}, \end{aligned} \quad (7.6.6)$$

где введено обозначение



$$\langle AB \rangle_\omega = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle A(t)B(0) \rangle. \quad (7.6.7)$$

В (7.6.6) первое слагаемое описывает ядерное рассеяние, второе – магнитное рассеяние, третье слагаемое соответствует интерференции. Наконец, последнее слагаемое, называемое ниже киральным, связано с винтовыми магнитными структурами и флуктуациями. Третье и четвертое слагаемые могут быть отличны от нуля только, если система в целом характеризуется каким-либо  $t$  нечетным псевдовектором (намагниченность, ядерная поляризация, киральность и т.д.).

По поводу выражения (7.6.6) необходимо отметить следующее:

1. Вследствие соответствующих формул (§§ 6.1 и 6.2) амплитуды  $N^+(\vec{q})$  и  $\vec{M}_\perp^+(\vec{q})$  отличаются от  $N(\vec{q})$  и  $\vec{M}_\perp(\vec{q})$  заменой  $\vec{q}$  на  $-\vec{q}$ :

$$N^+(\vec{q}) = N(-\vec{q}); \quad \vec{M}_\perp^+(\vec{q}) = \vec{M}_\perp(-\vec{q}). \quad (7.6.8)$$

2. При выводе (7.6.6) мы не проводили разделения на упругое и неупругое рассеяние. Его удобно сделать теперь, для этого рассмотрим выражение (7.6.7) и выделим из  $A$  и  $B$  их равновесные средние значения  $\langle A \rangle$  и  $\langle B \rangle$ . Тогда имеем  $A = A - \langle A \rangle + \langle A \rangle$  и такая же формула для  $B$ . Подставляя это значение в (7.6.7), получаем:

$$\langle AB \rangle_\omega = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(i\omega t) \langle (A(t) - \langle A \rangle)(B(0) - \langle B \rangle) \rangle + \langle A \rangle \langle B \rangle \delta(\omega). \quad (7.6.9)$$

В этом выражении первое слагаемое справа уже не содержит вклада, пропорционального  $\delta(\omega)$ , и поэтому является чисто неупругим. Его называют корреляционной функцией или коррелятором величин  $\delta A = A - \langle A \rangle$  и  $\delta B = B - \langle B \rangle$ . То, что коррелятор не содержит множителя  $\delta(\omega)$ , является следствием того обстоятельства, что в термодинамически равновесной системе время релаксации всегда конечно и при больших разностях времен среднее от произведения превращается в произведение средних (см. гл. 4):

$$\langle A(t)B(0) \rangle \Big|_{t \rightarrow \pm\infty} = \langle A \rangle \langle B \rangle. \quad (7.6.10)$$

Условие ослабления корреляций (7.6.10) является математическим признаком эргодичности системы.

Ниже мы будем рассматривать (7.6.6) как чисто неупругую часть сечения, понимая под  $N$  и  $\vec{M}_\perp$  отклонения этих величин от их средних значений. Выделенную описанным образом упругую часть сечения после интегрирования по  $\omega$  удобно записать в виде:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = N^+(\vec{q})N(\vec{q}) + \vec{M}_\perp^+(\vec{q})\vec{M}_\perp(\vec{q}) + \vec{P}_0 \left\{ \vec{M}_\perp^+(\vec{q})N(\vec{q}) + N^+(\vec{q})\vec{M}_\perp(\vec{q}) \right\} + i\vec{P}_0 \left[ \vec{M}_\perp^+(\vec{q}) \times \vec{M}_\perp(\vec{q}) \right], \quad (7.6.11)$$

где мы опустили угловые скобки, означающие термодинамическое усреднение.

Формула (7.6.11) описывает рассеяние в упорядоченном кристалле, если можно пренебречь всеми дефектами. В реальном кристалле, и тем более в неупорядоченном твердом теле, например, в аморфном веществе, всегда имеются области, устроенные по-разному, но этот беспорядок не меняется со временем и поэтому рассеяние на нем является упругим. В этом случае для получения истинного сечения упругого рассеяния необходимо произвести усреднение выражения (7.6.11) по статическому (замороженному) беспорядку. В результате, входящие в (7.6.11) произведения превратятся в корреляционные функции, описывающие статический беспорядок системы. Очевидно также, что в случае неупорядоченной системы усреднять по беспорядку надо и неупругую часть сечения рассеяния (7.6.6).

Как показано в гл. 4, корреляционные функции, входящие в выражение (7.6.6) для сечения неупругого рассеяния, выражаются через мнимые части соответствующих обобщенных восприимчивостей:

$$\langle AB \rangle_{\omega} = \frac{1}{\pi} \frac{\text{Im} \chi_{AB}(\omega)}{1 - \exp\left(-\frac{\omega}{T}\right)}. \quad (7.6.12)$$

Это выражение является следствием эргодичности системы, благодаря которому термодинамическое усреднение производится с помощью распределения Гиббса. Выражение (7.6.12) удобно тем, что, умножив экспериментальные данные по упругому рассеянию на стандартный множитель  $\pi \left(1 - \exp\left(-\frac{\omega}{T}\right)\right)$ , мы выделяем

динамическую восприимчивость в чистом виде, а именно она является объектом теоретических исследований.

Используя (7.6.8) и условие четности

$$\begin{aligned} \text{Re} \chi_{BA}(\omega) &= \text{Re} \chi_{AB}(-\omega) \\ \text{Im} \chi_{BA}(-\omega) &= -\text{Im} \chi_{AB}(\omega) \end{aligned} \quad (7.6.13)$$

нетрудно показать, что мнимые части обобщенных восприимчивостей, соответствующих первым двум слагаемым (7.6.6), а также сумма мнимых частей, входящих в интерференционный член, являются нечетными функциями  $\omega$ . Мнимая часть киральной восприимчивости четна по  $\omega$ . Это будет подробно обсуждено в дальнейшем. Указанные свойства четности позволяют получить так называемое статическое приближение для сечения рассеяния. Тогда при заданном направлении рассеяния можно пренебречь зависимостью  $k_f$  и  $\vec{q} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$  от переданной энергии, а (7.6.11) заменить следующим выражением:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = T \chi_{N_{\vec{q}}, N_{\vec{q}}}^+(0) + T \chi_{M_{\vec{q}}, M_{\vec{q}}}^+(0) \vec{P}_0 T \left[ \chi_{M_{\vec{q}}, N_{\vec{q}}}^+(0) + \chi_{N_{\vec{q}}, M_{\vec{q}}}^+(0) \right], \quad (7.6.14)$$

где статические восприимчивости  $\chi(0)$  возникли как следствие соотношения Крамерса-Кронига:

$$\operatorname{Re} \chi_{AB}(\omega) = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx \operatorname{Im} \chi_{AB}(x)}{x - \omega}, \quad (7.6.15)$$

из которого вытекает, что

$$\chi_{AB}(0) = \frac{1}{\pi} P \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx \operatorname{Im} \chi_{AB}(x)}{x}. \quad (7.6.16)$$

Напомним еще, что в силу (7.6.6) и (7.6.7) восприимчивости  $\chi_{\vec{M}_{\perp}^+, N}$  и  $\chi_{N, \vec{M}_{\perp}^+}$  являются псевдовекторами.

Выражение (7.6.14) широко используется для описания результатов экспериментов в тех случаях, когда измерение спектра рассеянных нейтронов почему-то не производится. С его помощью, в частности, устанавливается температурная зависимость корреляционной длины вблизи от точек фазового перехода II рода, когда характерная энергия становится заведомо малой по сравнению с температурой перехода и энергией нейтронов. Следует, однако, отметить, что к формуле (7.6.14) надо относиться с осторожностью при малоугловом рассеянии. Действительно, она выведена в предположении, что  $\omega \ll T, E_i$  и поэтому можно считать, что  $|\vec{q}| \cong 2k_i \sin \theta/2$ , где  $\theta$  – угол рассеяния. Однако при малоугловом рассеянии  $2k_i \sin \theta/2 \cong k_i \theta \ll 1$  и может оказаться, что отношение  $\omega/E_i$  того же порядка или больше. Действительно, в случае  $\theta \ll 1$  и  $\omega/E_i \ll 1$  имеем:

$$|\vec{q}| = k_i \sqrt{\theta^2 + \frac{\omega^2}{4E_i^2}}. \quad (7.6.17)$$

Поэтому статическое приближение при малоугловом рассеянии применимо только, если есть уверенность в том, что  $|\omega|/2E_i \ll \theta$ .

Аналогично (7.6.6) получается выражение для вектора поляризации нейтронов:

$$\begin{aligned} \vec{P} \frac{d\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{k_f}{k_i} \left\{ \vec{P}_0 \langle N^+(\vec{q}) N(\vec{q}) \rangle_{\omega} + \langle \vec{M}_{\perp}^+(\vec{q}) \vec{M}_{\perp}(\vec{q}) + N^+(\vec{q}) \vec{M}_{\perp}(\vec{q}) \rangle_{\omega} + \right. \\ \left. + i \langle N^+(\vec{q}) [\vec{M}_{\perp}(\vec{q}) \times \vec{P}_0] \rangle_{\omega} - i \langle [\vec{M}_{\perp}^+(\vec{q}) \times \vec{P}_0] N(\vec{q}) \rangle_{\omega} + \right. \\ \left. + \langle (\vec{P}_0, \vec{M}_{\perp}^+(\vec{q})) \vec{M}_{\perp}(\vec{q}) \rangle_{\omega} + \langle \vec{M}_{\perp}^+(\vec{q}) \vec{M}_{\perp}(\vec{q}), \vec{P}_0 \rangle_{\omega} - \langle \vec{M}_{\perp}^+(\vec{q}) \vec{M}_{\perp}(\vec{q}) \rangle_{\omega} \vec{P}_0 - \right. \\ \left. - i \langle [\vec{M}_{\perp}^+(\vec{q}) \times \vec{M}_{\perp}(\vec{q})] \rangle_{\omega} \right\}. \quad (7.6.18) \end{aligned}$$

В этом выражении новыми по сравнению с (7.6.6) являются слагаемые, содержащие векторные произведения  $[\vec{M}_{\perp} \times \vec{P}_0]$  и  $[\vec{M}_{\perp}^+ \times \vec{P}_0]$ .

Введем симметричную и антисимметричную части магнитной восприимчивости, что упростит дальнейшее обсуждение

$$\langle S^\alpha(-\vec{q}), S^\beta(\vec{q}) \rangle = \chi_{\alpha\beta}(\vec{q}, \omega) = \chi_{\alpha\beta}^{(S)}(\vec{q}, \omega) + \chi_{\alpha\beta}^{(A)}(\vec{q}, \omega), \quad (7.6.19)$$

где  $\chi_{\alpha\beta}^{(S)} = \chi_{\beta\alpha}^{(S)}$  и  $\chi_{\alpha\beta}^{(A)} = -\chi_{\beta\alpha}^{(A)}$ . Так как любой антисимметричный тензор второго ранга однозначно связан с аксиальным вектором, можно написать

$$\chi_{\alpha\beta}^{(A)}(\vec{q}, \omega) = -i\varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \vec{C}_\gamma(\vec{q}, \omega). \quad (7.6.20)$$

Здесь  $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$  – единичный псевдотензор третьего ранга,  $\vec{C}$  – аксиальный вектор, который мы будем называть вектором киральности или киральностью.

Таким образом, сечение рассеяния зависит от поляризации нейтронов, если не равен нулю вектор киральности  $\vec{C}$ . Физический смысл разделения восприимчивости на симметричную и антисимметричную (киральную) части состоит в следующем: симметричная часть описывает флуктуации намагниченности вдоль осей  $x, y, z$ , а киральная – винтовые флуктуации.

В результате вместо (7.6.6) мы имеем

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma}{d\Omega d\omega} = & \frac{1}{\pi} \frac{k_f}{k_i} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\omega}{T}\right) \right]^{-1} \times \\ & \times \left\{ \text{Im} \langle N(-\vec{q}) N(\vec{q}) \rangle_\omega + r^2 F_m^2 \text{Im} \chi_{\alpha\beta}^{(S)}(\vec{q}, \omega) (\delta_{\alpha\beta} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_\beta) + \right. \\ & \left. + 2r^2 F_m^2 (\vec{P}_0 \hat{q}) (\hat{q} \text{Im} \vec{C}(\vec{q}, \omega)) + \vec{P}_0 \text{Im} \langle N(-\vec{q}) \vec{M}_\perp(\vec{q}) + \vec{M}_\perp(-\vec{q}) N(\vec{q}) \rangle_\omega \right\} \end{aligned} \quad (7.6.21)$$

где  $F_m^2$  – магнитный формфактор иона. Если в системе нет псевдовектора, то остаются только два первых слагаемых, отвечающих за ядерное и обычное магнитное рассеяние, и сечение не зависит от поляризации  $\vec{P}_0$ .

В случае магнитной изотропии рассеивателя магнитная восприимчивость имеет вид

$$\chi_{\alpha\beta} = \chi^{\delta_{\alpha\beta}}, \quad (7.6.22)$$

и второе слагаемое в (7.6.21) оказывается равным  $r^2 F_m^2 \text{Im} \chi$ . Это имеет место, например, в кубических кристаллах в парамагнитной фазе (ферромагнетики выше точки Кюри). Третье слагаемое в (7.6.21) описывает киральные (винтовые) спиновые флуктуации. Наконец, последнее слагаемое ответственно за интерференцию магнитного и ядерного рассеяния. Необходимо отметить, что векторы, определяющие киральное интерференционное рассеяние, взаимно перпендикулярны. Таким образом, направляя, например, поляризацию  $\vec{P}_0$  вдоль переданного импульса  $\vec{q}$ , можно избавиться от интерференционного вклада в сечение.

Аналогичным образом для поляризации рассеянных нейтронов имеем

$$\begin{aligned}
\vec{P} \frac{d\sigma}{d\Omega d\omega} &= \frac{1}{\pi} \frac{k_f}{k_i} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\omega}{T}\right) \right]^{-1} \left\{ \text{Im} \langle N(-\vec{q}) N(\vec{q}) \rangle_\omega + \right. \\
&+ 2r^2 F_m^2 \left[ \text{Im} \chi_\perp^{(s)}(\vec{q}, \omega) \vec{P}_0 - \text{Im} \chi_{\alpha\alpha}^{(s)} \vec{P}_0 - 2\hat{q} \left( \hat{q} \text{Im} \vec{C}(\vec{q}, \omega) \right) \right] + \\
&+ \text{Im} \langle N(-\vec{q}) \vec{M}_\perp(\vec{q}) + \vec{M}_\perp(-\vec{q}) N(\vec{q}) \rangle_\omega + \\
&\left. + i \text{Im} \langle N(-\vec{q}) \vec{M}_\perp(\vec{q}) - \vec{M}_\perp(-\vec{q}) N(\vec{q}) \rangle_\omega \times \vec{P}_0 \right\}
\end{aligned} \quad (7.6.23)$$

Здесь первое слагаемое – вклад ядерного рассеяния, не меняющий поляризацию нейтронов. Два следующих слагаемых описывают изменение нейтронной поляризации при обычном магнитном рассеянии, где  $\chi_\perp^{(s)}(\vec{q}, \omega)$  – тензор с компонентами

$$\chi_\perp^{(s)}(\vec{q}, \omega) = (\delta_{\alpha\alpha} - \hat{q}_\alpha \hat{q}_{\alpha'}) \chi_{\alpha\beta}^{(s)} (\delta_{\beta\beta} - \hat{q}_\beta \hat{q}_{\beta'}), \quad (7.6.24)$$

перпендикулярный вектору  $\hat{q}$ :  $\chi_\perp \hat{q} = \hat{q} \chi_\perp = 0$ . Возникновение поляризации при рассеянии описывается киральным слагаемым, а также интерференцией между ядерным и магнитным рассеянием. Наконец, последнее слагаемое определяет интерференционный поворот вектора поляризации  $\vec{P}_0$ . Подчеркнем, что как киральное рассеяние, так и интерференционные члены возникают только при наличии в системе аксиального вектора.

Если падающие нейтроны поляризованы вдоль переданного импульса, поляризация при обычном магнитном рассеянии меняет знак и имеет место равенство

$$\vec{P} = \frac{\sigma_n - \sigma_m}{\sigma_n + \sigma_m} \vec{P}_0, \quad (7.6.25)$$

где  $\sigma_n$  и  $\sigma_m$  – сечения ядерного и магнитного рассеяния соответственно.

Часто магнитное рассеяние оказывается значительно больше ядерного. Это имеет место, например, для критического рассеяния в ферромагнетиках, рассеяния в антиферромагнетиках около магнитных брэгговских пиков и т.д. В этом случае для магнитоизотропных образцов из (7.6.22) и (7.6.23) следует простая формула [Halpern and Johnson, 1939]:

$$\vec{P} = -\hat{q} (\hat{q} \vec{P}_0), \quad (7.6.26)$$

В случае упругого рассеяния формулы для сечения и поляризации имеют ту же структуру, что и выражения (7.6.21) и (7.6.23), и получаются из них заменой

$$\frac{1}{\pi} \frac{k_f}{k_i} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\omega}{T}\right) \right]^{-1} \text{Im} \langle A, B \rangle_\omega \rightarrow \langle A \rangle \langle B \rangle, \quad (7.6.27)$$

где угловые скобки обозначают термодинамическое усреднение.

Отметим еще одно важное обстоятельство. Часто на эксперименте измеряется рассеяние в заданном направлении (без измерения переданной энергии), то есть проинтегрированное по переданной энергии  $\omega$ . Если при этом

характерная передаваемая энергия мала по сравнению с  $T$  и  $E_i$ , то стоящий в (7.6.21) и (7.6.23) множитель

$$\frac{1}{\pi} \frac{k_f}{k_i} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\omega}{T}\right) \right]^{-1}$$

можно заменить на  $T/\pi\omega$  и в соответствующие выражения для сечения и поляризации будут входить интегралы вида

$$\frac{T}{\pi} \int \frac{d\omega}{\omega} \text{Im} \langle A, B \rangle_{\vec{q}, \omega}. \quad (7.6.28)$$

Пренебрегая в этих интегралах зависимостью переданного импульса от  $\omega$  (экспериментально фиксируется угол рассеяния, а не  $\vec{q}$ ), имеем равенство (гл. 4):

$$\langle AB \rangle_{\omega=0} = \frac{T}{\pi} \int \frac{d\omega}{\omega} \text{Im} \langle A, B \rangle_{\omega}. \quad (7.6.29)$$

Здесь слева стоит обобщенная восприимчивость при  $\omega=0$ , называемая статической восприимчивостью. Соответствующие выражения для сечения и поляризации называются статическими (не путать с упругими).

Как уже отмечалось, при отсутствии в системе аксиально-векторных взаимодействий сечение магнитного рассеяния не зависит от поляризации  $\vec{P}_0$ , и при магнитном рассеянии происходит поворот вектора поляризации, описываемый в (7.6.23) выражением в квадратных скобках. В результате возникают процессы рассеяния без поворота и с поворотом спина нейтрона, экспериментальное изучение которых является стандартным методом отделения магнитного рассеяния от ядерного и разделения разных вкладов в магнитное рассеяние.

### 7.6.2. Малоугловое рассеяние поляризованных нейтронов

Рассмотрим кратко основные особенности малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов, следуя обзору А.И.Огорокова [Огороков, 1995].

В случае больших углов рассеяния на кристаллических материалах переданный вектор  $\vec{q}$ , кроме вектора  $\vec{q}'$ , связанного с рассеянием на неоднородностях надатомного масштаба, включает в себя вектор обратной решетки  $\vec{g}$ :

$$\vec{q} = \vec{g} + \vec{q}'. \quad (7.6.30)$$

Как правило, вектор  $\vec{q}$  очень мал по сравнению с  $\vec{g}$ , и все поляризационные эффекты определяются вектором  $\vec{g}$ , что используется для изучения атомной и магнитной структуры и для получения монохроматических и поляризованных нейтронных пучков брэгговским отражением от намагниченных кристаллов.

В случае малоуглового рассеяния исследуются некристаллические материалы. Для нейтронов с длиной волны  $\lambda$ , большей максимальной длины

волны  $\lambda_m$  можно наблюдать брэгговское отражение. При этом в обоих случаях  $\vec{g} = 0$  и поляризационные эффекты будут определяться только вектором  $\vec{q}' \equiv \vec{q}$ . Это означает, что, используя соотношение (7.3.33), мы можем определять направление вектора рассеяния  $\hat{q}$  и разделять упругие и неупругие процессы рассеяния измерением только поляризации  $\vec{P}$  рассеянных нейтронов. Действительно, задавая поочередно поляризацию вдоль осей координат  $P_{0i}$ , мы будем иметь  $P_i = -\hat{q}_i^2 P_{0i}$ , (рис. 7.6.1), которые, в свою очередь, связаны с углом рассеяния  $\theta$  и переданной энергией  $\omega = E' - E$ , где  $E$  и  $E'$  – энергия нейтронов до и после рассеяния. Из геометрии малоуглового эксперимента (рис. 7.6.2) следует:

$$q = k \left\{ 2 \left[ 1 - \left( 1 - \frac{\omega}{E} \right)^{1/2} \cos \Theta \right] \right\}^{1/2}, \quad (7.6.31)$$

что при малых переданных энергиях  $\omega \ll 2E$  и малых углах рассеяния  $\theta \ll 1$  дает

$$q = k \left[ \theta^2 + \left( \frac{\omega}{2E} \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (7.6.32)$$

Тогда для компонент единичного вектора  $\hat{q}$  получаем:

$$\hat{q}_{x(y)} = 2E\theta / \left[ (2E\theta)^2 + \omega^2 \right]^{1/2}, \quad (7.6.33)$$

$$\hat{q}_z = \omega / \left[ (2E\theta)^2 + \omega^2 \right]^{1/2}, \quad (7.6.34)$$

Из этих уравнений видно, что  $\hat{q}_{x(y)}$ -компоненты связаны с упругим рассеянием на угол  $\theta$ , а  $\hat{q}_z$  пропорциональна переданной энергии  $\omega$ . Для дальнейшего удобно ввести степень неупругости рассеяния

$$R = \frac{P_z}{P_x + P_y} = \frac{\omega^2}{(2E\theta)^2}, \quad (7.6.35)$$

(здесь и далее для краткости компоненты  $P_i$  подразумеваются нормированными на  $P_{0i}$ ).

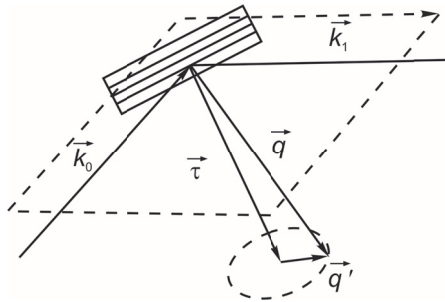


Рис. 7.6.1. Векторная схема малоуглового рассеяния.

Из формулы (7.3.17) следует, что  $P_i = -\hat{q}_i^2$ , а поскольку  $\sum \hat{q}_i^2 = 1$  (по определению единичного вектора), то

$$\sum P_i = -1. \quad (7.6.36)$$

Это «правило суммы» является важным при обработке результатов эксперимента. Действительно, измеренная в эксперименте интенсивность  $I_e$  состоит из магнитного рассеяния  $I_m$  и фонового (ядерного рассеяния и фона установки)  $I_b$  с соответствующей поляризацией  $P_e$ ,  $P_m$  и  $P_b$ , так, что

$$P_e I_e = P_m I_m + P_b I_b. \quad (7.6.37)$$

Отсюда, учитывая (7.4.36), получим:

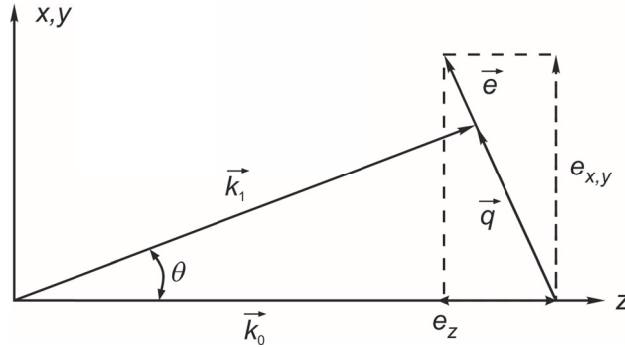
$$I_m = \frac{\sum P_{bi} - \sum P_{ei}}{1 + \sum P_{bi}} I_e, \quad (7.6.38)$$

$$P_{mi} = \frac{P_{ei} (\sum P_{bi} + 1) - P_{bi} (\sum P_{ei} + 1)}{\sum P_{bi} - \sum P_{ei}}, \quad (7.6.39)$$

а компоненты интенсивности, соответствующие упругому рассеянию ( $I_{el}$ ) и неупругому ( $I_{inel}$ ), легко разделяются:

$$I_{el} = -(P_{mx} + P_{my}) I_m, \quad (7.6.40)$$

$$I_{inel} = -P_{mz} I_m, \quad (7.6.41)$$



**Рис. 7.6.2.** Разделение сечения магнитного рассеяния  $\sigma_m$  на упругую ( $\hat{q}_y^2 \sigma_m$ ) и неупругую ( $\hat{q}_z^2 \sigma_m$ ) составляющие,  $\omega_{in}$  и  $q_{in}$  – характерные переданные энергия и импульс неупругости, соответственно.

Такое разделение условно показано на рис. 7.6.2. Чувствительность к неупругой компоненте имеет максимум, который формируется спадающей интенсивностью  $I_m$  и нарастающей величиной  $P_z$  при увеличении переданной энергии  $\omega$ . Реально



характерная энергия максимума  $\omega_i$  может составлять 50 – 100 полуширин  $\Delta\omega$  квазиупругой составляющей, а чувствительность эксперимента к переданной энергии равна  $\langle\omega^2\rangle^{1/2} = 10^{-7} \text{ эВ}/1\%P_z$  при  $\lambda = 10 \text{ \AA}$  и  $\theta = 10^{-3}$ .

#### Рекомендуемая литература к главе 7

Абов Ю.Г., Гулько А.Д., Крупчицкий П.А. (1966), *Поляризованные медленные нейтроны*, М.: Атомиздат.

Малеев С.В. (2002), *УФН*, **172**, № 6, 617.

Brückel Th. and Schweika W. (Eds.) (2002), *Polarized neutron scattering, Matter and Materials, vol. 12*, Jülich: Forschungszentrum – Jülich.

Williams W.G. (1988), *Polarized neutrons*, Clarendon Press: Oxford.

## ГЛАВА 8. ОБЩИЕ ВОПРОСЫ ТЕОРИИ РАССЕЯНИЯ МЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ

Теория рассеяния начала развиваться в конце двадцатых и в тридцатые годы прошлого столетия с использованием формализма независимых от времени стационарных состояний рассеяния – стационарного формализма теории рассеяния. Временной формализм, который является более общим и реалистичным, появился в конце пятидесятих годов. Стационарная теория рассеяния вытекает из строгой постановки задачи столкновений, которая в квантовой механике, как и в классической, изначально формулируется в рамках временного формализма. Нестационарная теория имеет весомые математические и физические преимущества, а также легко поддается интерпретации [Ньютон, 1969; Тейлор, 1975]. Однако при практических вычислениях, по крайней мере, в нерелятивистском случае, она не очень удобна. Конкретные расчеты удобнее проводить при фиксированной энергии на основе стационарного уравнения Шредингера. В стационарной теории, в отличие от нестационарной, имеется ряд стандартных теоретических приемов, удобных экспериментаторам. Нестационарная теория обычно используется при решении задач, связанных с трактовкой специально поставленных задач. Мы также будем следовать этой логике. В своем изложении мы опираемся на работы [Ньютон, 1969; Sears, 1989; Балашов, 2012].

### § 8.1. Уравнения Липпмана-Швингера

Уравнения Липпмана-Швингера служат основой стационарной теории потенциального рассеяния, поэтому рассмотрим различные их варианты. Для наглядности воспользуемся операторной формой записи в формальной схеме [Lippman and Schwinger, 1950; Sears, 1989].

Рассмотрим взаимодействие частицы с произвольной макроскопической системой. Полный гамильтониан запишем в виде

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}, \quad (8.1.1)$$

где  $H_0$  – гамильтониан в отсутствии любого взаимодействия между частицей и системой,  $V$  – энергия взаимодействия. Начальное состояние с энергией  $E$  будем описывать функцией  $\hat{\Phi}$ , удовлетворяющей уравнению

$$\hat{H}_0 \hat{\Phi} = E \hat{\Phi}. \quad (8.1.2)$$

Состояние после взаимодействия будем описывать функцией  $\hat{\Psi}$ , которая получается из  $\hat{\Phi}$  согласно уравнению

$$\hat{\Psi} = (\hat{1} + \hat{G}_0 \hat{V})^{-1} \hat{\Phi}, \quad (8.1.3)$$

где  $\hat{G}_0$  – функция Грина свободного движения частицы:

$$\hat{G}_0 = (E - H_0)^{-1}. \quad (8.1.4)$$

Уравнение (8.1.3) перепишем в виде уравнения Липпмана-Швингера для волновой функции [Lippman and Schwinger, 1950]:

$$\hat{\Psi} = \hat{\Phi} + \hat{G}_0 \hat{V} \hat{\Psi}. \quad (8.1.5)$$

Поддействуем на обе части этого уравнения функцией  $\hat{G}_0^{-1}$ :

$$(H - E) \hat{\Psi} = i\varepsilon (\hat{\Psi} - \hat{\Phi}) \rightarrow 0, \quad (8.1.6)$$

откуда следует уравнение Шредингера (у.Ш.) в виде

$$\hat{H} \hat{\Psi} = E \hat{\Psi}. \quad (8.1.7)$$

Таким образом, если  $\hat{\Phi}$  – собственное состояние оператора  $\hat{H}_0$  с энергией  $E$ , то тогда, по крайней мере формально,  $\Psi$  – это собственное состояние с той же самой энергией.

Значение уравнения Липпмана-Швингера (8.1.5) состоит в том, что его решение удовлетворяет не только уравнению Шредингера (8.1.7), но и корректным граничным условиям задачи рассеяния, так как в него явно введено граничное условие в виде волновой функции начального состояния  $\hat{\Phi}$ . Функция  $\hat{\Psi}$  описывает состояние после рассеяния и оно включает в себя начальное состояние  $\hat{\Phi}$ , если взаимодействие включается адиабатически с временной константой  $\hbar/\varepsilon$ . Физический смысл величины  $\varepsilon$  будет виден из дальнейшего.

Уравнение (8.1.5) можно переписать в другом представлении с использованием формального выражения для полной запаздывающей функции Грина [Ньютон, 1969; Балашов, 2012]:

$$\hat{G} = [E + i\varepsilon - H]^{-1}. \quad (8.1.8)$$

С учетом (8.1.8) уравнение (8.1.5) принимает вид

$$\hat{\Psi} = \hat{\Phi} + \hat{G} \hat{V} \hat{\Phi}. \quad (8.1.9)$$

А уравнение для полной функции Грина (8.1.8) можно представить в виде, аналогичном (8.1.5)

$$\hat{G} = \hat{G}_0 + \hat{G}_0 \hat{V} \hat{G}. \quad (8.1.10)$$

Уравнение (8.1.10) тоже называют уравнением Липпмана-Швингера. В квантовой теории поля и теории многих тел оно носит название уравнения Дайсона. Уравнение Липпмана-Швингера для функции Грина (уравнение Дайсона) иногда оказывается удобным в задачах рассеяния, поскольку с функцией Грина связана матрица рассеяния  $\hat{S}$ . Главное его значение состоит в том, что на его основе можно развить схемы получения приближенных решений для волновой функции  $\hat{\Psi}$ , как будет видно в § 8.2.

В квантовой теории рассеяния вводится еще *оператор перехода*  $\hat{T}$ , или  $T$ -матрица. Физический смысл оператора перехода состоит в том, что амплитуда

рассеяния с точностью до множителя есть просто матричный элемент оператора перехода  $\hat{T}$  между начальным и конечным состояниями. Другими словами, матричный элемент  $\hat{T}$ -оператора есть амплитуда перехода из состояния свободного движения с импульсом  $k_0$  в состояние свободного движения с импульсом  $k_1$ .

Перепишем (8.1.3) в виде:

$$\hat{V}\hat{\Psi} = T\hat{\Phi}, \quad (8.1.11)$$

где оператор  $\hat{T}$  определяется выражением

$$\hat{T} = \hat{V}(\hat{1} - \hat{G}_0\hat{V})^{-1}. \quad (8.1.12)$$

Уравнение Липпмана-Швингера для волновой функции (8.1.5) теперь можно представить в виде:

$$\hat{\Psi} = (\hat{1} + \hat{G}_0\hat{T})\hat{\Phi}. \quad (8.1.13)$$

Это уравнение дает формальное решение задачи рассеяния через  $\hat{T}$ -оператор. Другими словами, проблема решения у.Ш. (8.1.7) или, что эквивалентно, уравнения Липпмана-Швингера для волновой функции (8.1.5), как и в случае полной функции Грина, сводится к нахождению  $T$ -матрицы, для которой из (8.1.12) следует уравнение

$$\hat{T} = \hat{V} + \hat{T}\hat{G}_0\hat{V}. \quad (8.1.14)$$

Уравнение (8.1.14) для  $\hat{T}$ -оператора эквивалентно уравнению (8.1.5) для  $\Psi$ -функции. Его также называют уравнением Липпмана-Швингера (для оператора перехода). Это уравнение можно представить в виде итерационного ряда по взаимодействию  $\hat{V}$ :

$$\hat{T} = \hat{V} + \hat{V}\hat{G}_0\hat{V} + \hat{V}\hat{G}_0\hat{V}\hat{G}_0\hat{V} + \dots, \quad (8.1.15)$$

что есть не что иное, как борновский ряд теории возмущений по кратности взаимодействия. Уравнение (8.1.15) можно интерпретировать как разложение по кратности рассеяния, в котором однократное рассеяние представлено оператором  $\hat{V}$ , двукратное – членом  $\hat{V}\hat{G}_0\hat{V}$  и т.д. Первое борновское приближение

$$T = V \quad (8.1.16)$$

эквивалентно исключению из рассмотрения многократного рассеяния.

В феноменологической теории рассеяния медленных нейтронов оператор  $\hat{T}$  вводится «ad hoc» как эффективный потенциал, чтобы получить правильный ответ в первом борновском приближении, вместо того, чтобы ввести модельный потенциал  $V$  и решать уравнение (8.1.14). Это и есть псевдопотенциал Ферми.

Отметим еще раз, что феноменологическая (кинетическая) теория Ферми оказалась весьма успешной для большинства применений рассеяния нейтронов при изучении конденсированного вещества. В то же время имеется целый ряд ситуаций, когда необходимо учитывать эффекты многократного рассеяния, как

например, в случае дифракции на больших монокристаллах. В таких случаях кинематической теории однократного рассеяния не достаточно, требуется использование так называемой динамической теории, учитывающей многократное рассеяние. Изложенный в данном разделе формализм является основой такой общей теории. Динамическая теория позволяет дать единое описание как дифракции, так и явлениям, связанным с интерференцией нейтронных волн, которые распространяются в направлении первичной волны (зеркальное отражение, преломление и т.д.). В последнем случае рассеяния при скользющем падении борновское приближение не всегда позволяет дать правильную интерпретацию экспериментальным результатам [Toperverg, 2002; 2015].

## § 8.2. Оператор перехода ( $T$ -оператор)

Теперь рассмотрим результаты феноменологической теории (гл. 2) с точки зрения общей теории рассеяния.

Процесс рассеяния описывается волновой функцией, которая в стационарном формализме является решением стационарного у.Ш. (8.1.7), которое перепишем в виде

$$\hat{H}\psi(\vec{r}) = E\psi(\vec{r}), \quad E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_n}, \quad (8.2.1)$$

где  $\vec{r}$  – пространственная координата нейтрона,

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}, \quad H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m_n} \nabla^2, \quad (8.2.2)$$

где  $m_n$  – масса нейтрона,  $\hat{V} = V(\vec{r})$  – потенциальная энергия взаимодействия нейтрона с силовым центром, которое исчезает на некотором расстоянии от центра. Нашей задаче соответствует так называемый потенциал конечного радиуса:

$$V(r) = \begin{cases} V_0, & r \leq r_0 \\ 0, & r > r_0 \end{cases}. \quad (8.2.3)$$

Псевдопотенциал Ферми является частным случаем потенциала (8.2.3).

Подставляя (8.2.2) в (8.2.1), перепишем у.Ш. в виде

$$(\hat{H}_0 - E) \psi(\vec{r}) = -V\psi(\vec{r}). \quad (8.2.4)$$

В феноменологической теории в качестве базового используются состояния типа плоская волна плюс рассеянная волна с условием, что на достаточно большом расстоянии от силового центра, когда взаимодействием можно пренебречь, волновая функция представляется суперпозицией плоской  $\phi_{\vec{k}}(\vec{r}) = \exp(i\vec{k}\vec{r})$ , и расходящейся сферической  $\psi_{\vec{k}}^1(\vec{r})$  волн (3.2.4):

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r})\Big|_{r \rightarrow \infty} = \exp(i\vec{k}\vec{r}) + \psi_{\vec{k}}^+(\vec{r}), \quad (8.2.5)$$

где  $\vec{k}$  – импульс (волновой вектор) нейтрона. Плоская волна является частным решением однородного уравнения

$$(H_0 - E)\phi(\vec{r}) = 0. \quad (8.2.6)$$

В стационарной теории столкновений плоская волна используется для описания плоскопараллельного стационарного потока частиц с заданным импульсом  $\vec{p} = \hbar\vec{k}$ . Собственные функции у.Ш. образуют полный ортонормированный базис:

$$\int \phi_{\vec{k}}(\vec{r}) \phi_{\vec{k}'}^+(\vec{r}') \frac{d^3k}{(2\pi)^3} = \delta(\vec{r} - \vec{r}'), \quad (8.2.7a)$$

$$\int \psi_{\vec{k}}(\vec{r}) \psi_{\vec{k}'}^+(r) dr = \delta_{kk'}. \quad (8.2.7b)$$

К представлению (8.2.5) необходимо сделать следующие примечания. Во-первых, в квантовой механике реальные состояния физических систем описываются квадратично интегрируемые функции. Уравнения (8.2.4) и (8.2.6) таковых не имеют. Так что плоская волна в (8.2.5) никакого реального состояния нейтрона не описывает. Во-вторых, на каком основании мы можем разбивать волновую функцию на две части и приписывать им смысл волновых функций, описывающих сходящийся и расходящийся потоки. Ответы на эти вопросы даются в нестационарной формулировке задачи потенциального рассеяния [Ньютон, 1969; Базь и др., 1971; Балашов, 2012], где представление (8.2.5) обосновывается при следующих физических условиях: состояние частицы в падающем пучке представляет собой локализованный в импульсном пространстве волновой пакет и детектор расположен вне конуса, в котором распространяются частицы падающего пучка, регистрируются только рассеянные частицы.

В квантовой механике невозможно строго определить траекторию частицы. Частица при своем движении не бывает локализована точно ни в пространстве, ни по импульсу. Ее движение – это эволюция волнового пакета. В нашей задаче можно представить следующую картину. В начальный момент времени волновой пакет локализован достаточно далеко от рассеивающего центра, затем он движется с некоторым средним импульсом  $\vec{p}_0$  в его сторону. Со временем пакет расплывается, войдя основным своим массивом в область взаимодействия, деформируется и затем расходится широким, неоднородным по направлениям облаком. Вероятность попадания рассеянной частицы в расположенный на большом расстоянии детектор пропорциональна плотности вероятности нахождения частицы в соответствующей точке.

В случае рассеяния нейтронов детектор расположен на расстояниях, которые можно считать асимптотически далекими, а времена, которые нужны нейтронам, чтобы долететь до детектора – асимптотически большими. При таких условиях задачей теории рассеяния является нахождение по заданным параметрам

входного состояния свойств асимптотического состояния нейтронов при  $t \rightarrow \infty$ . Сама же пространственно-временная картина перехода из начального асимптотического состояния в конечное асимптотическое состояние практического значения не имеет. Эта ситуация обусловлена тем, что в теории используются ненаблюдаемые величины – волновые функции. Поэтому в теорию вводятся такие величины как матрицы перехода ( $T$ -матрицы) и матрицы рассеяния ( $S$ -матрицы). В следующем параграфе будет показано, как практически работает  $S$ -матричный формализм. Что же касается представления (8.2.5), то в феноменологической теории оно играет роль феноменологического граничного условия к стационарному у.Ш.

Найдем решение у.Ш. (8.2.4). Для этого используем эквивалентное ему уравнение Липпмана-Швингера для волновой функции (8.1.5), которое перепишем в явном виде, используя для невозмущенной задачи решение в виде плоской волны:

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = \exp(i\vec{k}\vec{r}) + \int G_0(E, \vec{r}, \vec{r}') V(\vec{r}') \psi_{\vec{k}}(\vec{r}') d^3\vec{r}', \quad (8.2.8)$$

где  $G_0$  – функция Грина (8.1.4), удовлетворяет уравнению

$$(E - \hat{H}_0) G_0(E, \vec{r}, \vec{r}') = \delta(\vec{r} - \vec{r}'). \quad (8.2.9)$$

В эквивалентности (8.2.4) и (8.2.8) можно убедиться, подставив (8.2.8) в левую часть (8.2.4).

Из всех возможных решений уравнения Липпмана-Швингера надо выбрать решения, удовлетворяющие асимптотическому условию (8.2.5). Рассмотрим функцию Грина  $\hat{G}_0$ . Уравнение (8.2.9) не определяет решение однозначно, что связано со способом обхода полюсов в спектральном представлении (см. § 8.4). Спектральное представление для функции Грина  $\hat{G}_0$  имеет вид [Балашов, 2012]:

$$G_0(E, \vec{r}, \vec{r}') = \int \frac{\phi_{\vec{k}}(\vec{r}) \phi_{\vec{k}}^*(\vec{r}') d^3\vec{k}_0}{E - \frac{\hbar^2 k^2}{2m} (2\pi)^3}, \quad (8.2.10)$$

где  $\phi_{\vec{k}}(\vec{r})$  – плоская волна из (8.2.5), описывающая свободное движение нейтрона с импульсом  $\vec{k}$ . Проводя интегрирование с использованием теоремы Коши, получаем

$$G_0^\pm(E, \vec{r}, \vec{r}') = \frac{m}{2\pi^2 \hbar^2} \frac{1}{i|\vec{r} - \vec{r}'|} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(\pm ik|\vec{r} - \vec{r}'|) k dk}{\hbar^2 (E \pm i\varepsilon) - k^2}, \quad (8.2.11)$$

где бесконечно малая добавка  $\pm i\varepsilon$  соответствует запаздывающей и опережающей, соответственно, функции Грина (см. § 8.4). Напомним, что, так как  $H_0$  имеет собственные значения, принадлежащие только непрерывному спектру, простирающемуся от  $E=0$  до  $E=\infty$ , то  $G_0(E)$  является аналитической

функцией  $E$ , регулярной всюду в положительной плоскости с разрезом от  $E=0$  до  $E=\infty$ . Выше разреза ( $\varepsilon \rightarrow 0^+$ ) функция (8.2.11) представляет расходящуюся сферическую волну (запаздывающую). Ниже разреза ( $\varepsilon \rightarrow 0^-$ ) получаем сходящуюся (опережающую) волну. Все сказанное относится и к полной функции Грина, соответствующей полному гамильтониану (8.2.2).

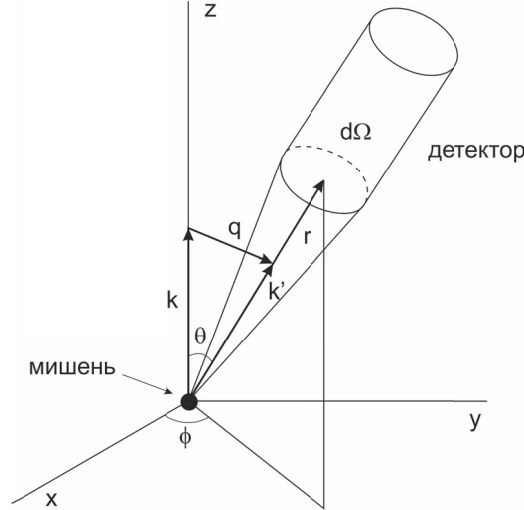


Рис. 8.2.1. Геометрия рассеяния.

После вычисления интегралов методом вычетов  $\varepsilon$  обращается в ноль. В результате имеем

$$G_0^\pm(E, \vec{r}, \vec{r}') = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \frac{\exp(\pm ik|\vec{r} - \vec{r}'|)}{|\vec{r} - \vec{r}'|}. \quad (8.2.12)$$

Выполнение асимптотического условия (8.2.5) обеспечивается подстановкой в уравнение Липпмана-Швингера (8.2.8) запаздывающей функции Грина  $\hat{G}^+$ . Покажем это. Для потенциала (8.2.3) интеграл в правой части (8.2.8) выполняется фактически по области конечных размеров порядка  $r_0$ . Поскольку нас интересует асимптотическое решение, то и функцию Грина  $\hat{G}_0^+$  можно брать в пределе  $r > r_0$ . В этом случае получаем:

$$G_0^+(E, \vec{r}, \vec{r}') \Big|_{r > r_0} \approx -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \frac{\exp(i\vec{k}\vec{r})}{r} \exp(-i\vec{k}'\vec{r}'), \quad (8.2.13)$$

где использовано разложение (3.2.10a)  $|\vec{r} - \vec{r}'| = r - \frac{r r'}{r} + \dots$  и обозначение  $\vec{k}' = k \frac{\vec{r}'}{r}$ .



Вектор  $\vec{k}'$  равен по модулю волновому вектору падающих частиц  $\vec{k}$  и направлен в точку наблюдения. Другими словами,  $\vec{k}'$  – это волновой вектор частицы, рассеянной в направлении единичного вектора  $\vec{r}/r$  (рис. 8.2.1).

Подставим (8.2.13) в (8.2.5). Получим:

$$\psi_{\vec{k}}^+(\vec{r})\Big|_{r \gg r_0} = \exp(i\vec{k}\vec{r}) - \frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \exp(-i\vec{k}'\vec{r}') V(\vec{r}') \cdot \psi_{\vec{k}}(\vec{r}') d^3r' \frac{\exp(i\vec{k}\vec{r})}{r}. \quad (8.2.14)$$

Таким образом, уравнение Липпмана-Швингера (8.2.5) с запаздывающей функцией Грина  $\hat{G}_0^+(E, \vec{r}, \vec{r}')$  (8.2.12) обеспечивает решение с требуемой асимптотикой волновой функции (8.2.5), которую теперь запишем в виде:

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r})\Big|_{r \rightarrow \infty} = \exp(i\vec{k}\vec{r}) + f(\vec{k}', \vec{k}) \frac{\exp(i\vec{k}\vec{r})}{r}. \quad (8.2.15)$$

В дальнейшем мы не будем специально обозначать запаздывающие решения, поскольку будем использовать только их. В (8.2.15) введена амплитуда рассеяния

$$f(\vec{k}', \vec{k}) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \exp(-i\vec{k}'\vec{r}') V(\vec{r}') \cdot \psi_{\vec{k}}(\vec{r}') d^3r'. \quad (8.2.16)$$

Квадрат модуля амплитуды рассеяния определяет на больших расстояниях от центра рассеяния интенсивность расходящейся волны  $\frac{\exp(i\vec{k}\vec{r})}{r}$  относительно падающей волны  $\exp(i\vec{k}\vec{r})$ .

Волновая функция состояния после рассеяния  $\psi(\vec{r})$  (8.2.8) при адиабатическом включении взаимодействия  $V$  удовлетворяет также уравнению Липпмана-Швингера для оператора перехода  $T$  (8.1.13). Перепишем (8.2.8) в виде (8.1.13)

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = \exp(i\vec{k}\vec{r}) + \int G_0(E, \vec{r}, \vec{r}') T(\vec{r}', \vec{r}) \exp(i\vec{k}\vec{r}') d^3r'. \quad (8.2.17)$$

Таким образом, волновая функция после рассеяния описывает суперпозицию падающей плоской волны и сферической рассеянной волны из каждой точки  $\vec{r}'$  где оператор перехода  $\hat{T}$  не равен нулю. Подставим функцию Грина (8.2.13) в (8.2.17), получаем

$$\psi_{\vec{k}}(\vec{r})\Big|_{r \gg r_0} = \exp(i\vec{k}\vec{r}) + f(\vec{k}', \vec{k}) \frac{\exp(i\vec{k}\vec{r})}{r} = \exp(ikr \cos \theta) + f(\theta) \frac{\exp(i\vec{k}\vec{r})}{r}. \quad (8.2.18)$$

Для амплитуды рассеяния получается общее выражение

$$f(\vec{k}', \vec{k}) = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \int \exp(i\vec{k}\vec{r} - ik'r') T(\vec{r}', \vec{r}) d\vec{r}' d\vec{r}. \quad (8.2.19)$$

Таким образом, матрица амплитуды рассеяния определяется  $T$ -матрицей перехода между начальным и конечным состояниями.

### § 8.3. Борновское приближение в методе искаженных волн

Как уже мы неоднократно отмечали, при проведении экспериментов по рассеянию нейтронов низких энергий в конденсированном веществе, в большинстве случаев адекватным оказывается борновское приближение, точнее говоря первое борновское приближение, соответствующее первому порядку теории возмущений по взаимодействию (§ 8.1). Трудности возникают в тех случаях, когда учета только однократного рассеяния уже недостаточно. Особенно необходимость выхода за рамки первого борновского приближения становится актуальной при рассеянии при скользящем падении [Toreverg, 2002; 2015]. В данном параграфе мы рассмотрим некоторые условия несоответствия первого борновского приближения и формальную схему простейшего выхода за его рамки – борновское приближение в методе искаженных волн.

#### 8.3.1. Примеры нарушения борновского приближения

Рассмотрим магнитную систему (гл. 6).

Матрица амплитуды рассеяния является функцией спина нейтрона  $\hat{\sigma}/2$  и, следовательно, как функция матрицы  $2 \times 2$  тоже матрица  $2 \times 2$  (см. главу 7). Диагональные элементы  $\hat{f}$  сохраняют спиновые состояния в процессе рассеяния, недиагональные элементы описывают переходы между этими состояниями. Согласно общей теореме [Ландау и Лифшиц, 2001, т. 3] любая скалярная функция  $\hat{f} = \hat{f}(\hat{\sigma})$  вектора  $\hat{\sigma}$  матриц Паули может быть представлена в виде совокупности ортогональных матриц  $\hat{\sigma}_x$ ,  $\hat{\sigma}_y$ ,  $\hat{\sigma}_z$  и единичной матрицы. В операторной форме

$$\hat{f} = f_0 + (\vec{f} \cdot \hat{\sigma}), \quad (8.3.1)$$

где

$$(\vec{f} \cdot \hat{\sigma}) = f_x \hat{\sigma}_x + f_y \hat{\sigma}_y + f_z \hat{\sigma}_z.$$

В (8.3.1)  $f_0 = f_0(\vec{k}_f, \vec{k}_i)$  среднее от диагонального элемента матрицы:  $f_0 = 1/2 \text{Tr}(\hat{f})$ . 3D вектор  $f = f(\vec{k}_f, \vec{k}_i)$  определяется как  $f = 1/2 \text{Tr}(\hat{f} \hat{\sigma})$ . Одно из главных свойств выражения (8.3.1) то, что оно не зависит от лабораторной системы координат, которая может быть введена в случае необходимости, а именно после всех формальных вычислений.

Параметризация матрицы амплитуды рассеяния (8.3.1) является точной и определяется только свойствами спиновой (1/2) алгебры. Однако вычисления параметров  $f_0$  и  $f$ , или  $f_{\pm}$ , можно выполнить только в каких-то приближениях для у.Ш. Простейшим является борновское приближение, в котором матрица

амплитуды рассеяния просто пропорциональна преобразованию Фурье от потенциала  $V(\mathbf{r})$  (8.2.19) (8.1.16):

$$\hat{f}^B(\vec{q}) = -\frac{m_n}{2\pi\hbar^2} \int d\vec{r} \exp(-i\vec{q}\vec{r}) \hat{V}(\vec{r}). \quad (8.3.2)$$

Теперь мы можем записать в явном виде параметры матрицы амплитуды рассеяния (8.3.1) в борновском приближении с использованием псевдопотенциала Ферми. Скалярный параметр ядерного ( $N$ ) рассеяния:

$$f_0^B \equiv f_N = -\sum_I b_i^N \exp(-i\vec{q}\vec{r}_i) \quad (8.3.3)$$

и векторный параметр магнитного ( $M$ ) рассеяния:

$$\mathbf{f}^B \equiv \mathbf{f}_M = -\sum_I b_i^M \exp(-i\vec{q}\vec{r}_i) \vec{m}_i^\perp, \quad (8.3.4)$$

где  $\vec{m}_i^\perp = \vec{\mu}_i^\perp / |\vec{\mu}_i^\perp|$  зависит от переданного вектора  $\mathbf{q}$  так что векторная компонента амплитуды рассеяния в борновском приближении направлена вдоль фурье компоненты магнитной индукции  $\vec{f}_M \parallel \vec{B}(\vec{q})$ . Заметим, что это так только в БП, в котором присутствует только зависимость от  $\vec{q}$ . В более общем случае амплитуда рассеяния зависит от  $\vec{k}_i$  и  $\vec{k}_f$ .

Применимость борновского приближения (БП) предполагает, что только малая часть падающего пучка нейтронов рассеивается, тогда как большая их часть проходит через образец – мишень без рассеяния. Эта ситуация обусловлена осциллирующими множителями в (8.3.3) и (8.3.4), которые сильно подавляют вклады от отдельных атомов. В результате, хотя сечение некогерентного рассеяния от индивидуальных атомов, пропорционально огромному числу (порядка числа Авогадро) атомов в  $1 \text{ см}^3$ , результирующее сечение рассеяния оказывается мало.

Хорошо известным случаем, когда условия применимости БП нарушаются, является упругое рассеяние от идеальных кристаллов. В этом случае возникает драматическое когерентное усиление рассеяния, когда вектор рассеяния  $\vec{q}$  совпадает с вектором обратной решетки  $\vec{\tau}$ , т.е. при выполнении условия Брэгга  $\vec{q} = \vec{\tau}$ . При этом условия все вектора рассеяния могут быть в фазе, так что осциллирующие множители в (8.3.3) и (8.3.4) не сокращают друг друга. В результате сечение рассеяния при дифракции Брэгга может стать большим и борновское приближение становится неприменимым. В этом случае необходимо использовать динамическую теорию дифракции.

Далее мы рассмотрим другой случай, когда условия применимости БП нарушаются. Это происходит при малых величинах векторов передачи  $|\vec{q}|a \ll \pi$ , где  $a$  – межатомное расстояние. В этом случае (рассеяние при малых углах и скользющем падении) разницы фаз рассеянных отдельными атомами волн тоже малы и не происходит подавления отдельных членов в суммах (5.30) и (5.31).

Вектор передачи  $|\vec{q}| = |\vec{k}_f - \vec{k}_i|$ , где  $\vec{k}_i$  – вектор падающей нейтронной волны,  $\vec{k}_f$  – вектор рассеянной на угол  $\theta$  волны. При упругом рассеянии  $|\vec{k}_f| = |\vec{k}_i| = 2\pi/\lambda$  и  $q = 2k \sin \theta/2$ . При длине волны  $\lambda \sim a$  и малых значениях  $q \ll \pi/a$  значения углов рассеяния тоже малы  $\theta \ll 1$ . Тогда

$$q = 2k \sin \theta/2 \approx k\theta. \quad (8.3.5)$$

При этом волновой вектор передачи  $\vec{q}$ , почти перпендикулярен волновому вектору волны  $\vec{k}_i$ , а проекция  $\vec{q}$  на направление волны  $k_i$  много меньше проекции на ортогональные направления. Если  $\theta = 0$ , все рассеянные волны находятся в фазе и амплитуды рассеяния в БП формально пропорциональны числу  $N$  членов в (8.3.3) и (8.3.4).

Соответствующее сечение рассеяния в направлении, близком к направлению падающего пучка, не зависит от формы образца и в борновском приближении в точности равно  $|Nb|^2$ . При больших углах рассеяния расфазировка в выражениях (8.3.3) и (8.3.4) начинает играть роль, так что вклад атомов, разделенных расстоянием большим  $1/q$ , будет подавлен. В результате сечение рассеяния будет убывать при увеличении  $q$  до значения, соответствующего одному из линейных размеров образца, хотя скорость убывания зависит от формы и ориентации образца. Поскольку линейные размеры образца намного больше межатомного расстояния, суммы в (8.3.3) и (8.3.4) можно аппроксимировать интегралами, так что

$$f_N = -\int d\vec{r} (nb)_N(\vec{r}) \exp(-i\vec{q}\vec{r}), \quad (8.3.6)$$

$$f_M = -\int d\vec{r} (nb)_M(\vec{r}) \exp(-i\vec{q}\vec{r}) \vec{m}_\perp, \quad (8.3.7)$$

где  $(nb)_N$  и  $(nb)_M$  – ядерная и магнитная плотности длины рассеяния (ПДР),  $n = 1/v_0$  – плотность ядер в образце,  $v_0$  – объем на одно ядро, и интегралы берутся по объему образца, освещаемого пучком нейтронов.

В экспериментах по малоугловому рассеянию нейтронов (МУРН) образец (мишень) обычно выбирают в форме пластины толщиной  $d$  и выставляют его большой поверхностью перпендикулярно падающему пучку. Координатная система выбирается так, что ось  $Z$  направлена по падающему пучку, т.е. перпендикулярно большой поверхности, а оси  $X$  и  $Y$  расположены по этой поверхности. При описанных условиях сечения рассеяния МУРН в БП имеют вид в случае неполяризованных нейтронов и в приближении однородности ПДР по объему образца:

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_N \approx (nb)_N^2 \Delta^2, \quad (8.3.8)$$

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_M \approx (nb)_M^2 \vec{m}_\perp^2 \Delta^2. \quad (8.3.9)$$

Здесь  $\vec{m}_\perp^2 = 1 - (\vec{m}\hat{q}\vec{e})^2$ ,  $\hat{q} = \vec{q}/q$  – единичный вектор в направлении вектора передачи импульса  $\vec{q}$ ,  $\Delta = \Delta_x \Delta_y \Delta_z$  – функция формы образца. Строго говоря, однородная намагниченность возможна в образце эллипсоидальной формы и если магнитное поле направлено вдоль одной из главных осей. Магнитный поток, входя через поверхность эллипсоида и будучи непрерывным, в то же время порождает неоднородные рассеянные поля в окружающем пространстве. Эти поля учитываются в преобразовании Фурье потенциала взаимодействия в (8.3.3) и приводят к анизотропии рассеяния, так что магнитный вклад зануляется, когда  $\vec{q} \parallel \vec{m}$ , и достигает максимума при  $\vec{q} \perp \vec{m}$ . В последующем предполагается, что образец может быть намагничен однородно в относительно слабом магнитном поле, приложенном в его плоскости, а краевые эффекты, типа наблюдаемых в сильном перпендикулярном поле, обсуждаться не будут.

Для образца прямоугольной формы [Toperverg, 2015]

$$\Delta_v = \frac{\sin(q_v L_v / 2)}{q_v / 2}, \quad (8.3.10)$$

где  $v = x, y, z$ ;  $L_x, L_y$  и  $L_z = d$  – линейные размеры,  $q_x, q_y, q_z$  – компоненты вектора рассеяния по декартовым координатам. Согласно этому выражению функция боковой поверхности  $\Delta_x \Delta_y$  имеет абсолютный максимум при  $q_x = 0$  и  $q_y = 0$ , достигая значения площади поверхности  $S = L_x \cdot L_y$ . При больших значениях  $q_x \gg L_x^{-1}$  и  $q_y \gg L_y^{-1}$  функция поверхности осциллирует с «боковым» (латеральным) волновым вектором передачи и затухает как  $(q_x \cdot q_y)^{-2}$ . Ширины главного максимума в перпендикулярных направлениях по порядку величины равны  $\sim \pi/L_x$  или  $\sim \pi/L_y$ . Это означает, что рассеяние при больших  $L_x$  и  $L_y$  в основном сконцентрировано при углах либо  $\theta_x = 0$ , либо  $\theta_y = 0$ , т.е. в направлении падающего пучка, либо  $\theta_x = \pi$ ,  $\theta_y = \pi$ , т.е. в обратном направлении. Первый случай соответствует распространению через образец,  $\Delta_z = d$ , когда сечение рассеяния (8.3.8), (8.3.9) пропорционально квадрату объема образца. Во втором случае нейтроны отражаются от поверхности, но  $\Delta_z = \lambda/2\pi \sin(kd)$  мало.

С другой стороны, интеграл

$$dq_v \Delta_v^2(q_v) \approx 2\pi L_x \quad (8.3.11)$$

пропорционален  $L_x$ . Поэтому в пределе очень больших  $L_x \rightarrow \infty$  и  $L_y \rightarrow \infty$  функции поверхности образца в (5.63) можно аппроксимировать:

$$\Delta_v(q_v) \approx 2\pi\delta(q_v), \quad (8.3.12)$$

где  $v = x, y$  и  $\Delta_v^2 \approx 2\pi L \delta(q_v)$ .

Используя (8.3.10), (8.3.12) и принимая во внимание, что рассеяние сконцентрировано вблизи направления падающего пучка, так что  $q_v \approx k\theta_v$ , проинтегрируем выражения (8.3.8) и (8.3.9) по телесному углу. Приближенные выражения для сечений рассеяния принимают вид:

$$\sigma_{N,M}^{\text{tot}} \approx S (nb)_{N,M}^2 d^2 \lambda^2. \quad (8.3.13)$$

Из этого выражения следует, что  $\sigma^{\text{tot}}$  возрастает пропорционально  $d$  и может сравниться с видимой площадью  $S$  образца, когда  $d^{-1} \approx (nb)_{N,M} \lambda$ . Фактически, для  $\lambda \approx 10 \text{ \AA}$  и  $(nb)_N \sim 10^{-5} \text{ \AA}^{-2}$  критическая толщина по величине будет порядка микрона.

При этой толщине и больше, БП не применимо и необходимо использовать другие подходы, например, приближение Эйконала с выборочным суммированием рядов теории возмущения Борна [Sears, 1989].

Важное замечание. Волна, рассеянная строго в направлении падающего пучка, испытывает деструктивную интерференцию с волной, проходящей через образец без взаимодействия. В результате поток нейтронов в прямом направлении уменьшается на поток, рассеянный в телесный угол. Поскольку должно выполняться правило сумм, выражение для рассеянного нейтронного потока принимает вид [Torververg et al., 1999]

$$j = j_0 \left( 1 - \frac{\sigma_{N,M}^{\text{tot}}}{S} \right) \delta(\vartheta_x) \delta(\vartheta_y) + \frac{j_0}{S} \left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right), \quad (8.3.14)$$

где  $j_0$  – падающий на образец поток. Из этого выражения видно, что полное сечение рассеяния не может быть больше площади образца.

При зеркальном отражении при нормальном падении сечение рассеяния очень мало до тех пор, пока длина волны  $\lambda$  не станет очень большой:  $\lambda \geq d \approx \sqrt{nb_{N,M}}$ . Но это возможно только для ультрахолодных нейтронов, у которых длина волны порядка сотен  $\text{\AA}$ .

Зеркальное отражение может иметь большую интенсивность для тепловых и холодных нейтронов, но при скользящем падении, обычно при углах падения пучка нейтронов  $\alpha_i \leq 1$  мин. Это можно видеть на рис. 8.3.1, где показано схематически падение нейтронной плоской волны на тонкую пластину при достаточно малом угле падения  $\alpha_i \ll 1$ . Проекция волнового вектора падающей волны на нормаль к поверхности  $p_i = k \sin \alpha_i \approx k\alpha_i$ , а проекция на поверхность (поверхностная, латеральная проекция)  $k_i = k \cos \alpha_i \approx k(1 - \alpha_i^2/2)$ ,  $k = |\vec{k}_i|$ . Проекция волнового вектора  $\vec{k}_f$  рассеянной волны в угол  $\alpha_f$  нормально к поверхности  $p_f = k \sin \alpha_f \approx k\alpha_f$  и в плоскости поверхности:

$k_f^x = k \cos \alpha_f \cos \theta_y$ ,  $k_f^y = k \cos \alpha_f \sin \theta_y$ . Нормальная проекция вектора рассеяния  $\vec{q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$  имеет вид:

$$q_z = k \{ \sin \alpha_f + \sin \alpha_i \} \approx k (\alpha_f + \alpha_i). \quad (8.3.15)$$

Латеральная компонента  $\vec{q}_{\parallel} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$  имеет проекции

$$q_x = \{ \cos \alpha_f \cos \theta_y - \cos \alpha_i \} \approx k (\alpha_i^2 - \alpha_f^2 - \theta_y^2) / 2, \quad (8.3.16)$$

$$q_y = k \cos \alpha_f \sin \theta_y \approx k \theta_y. \quad (8.3.17)$$

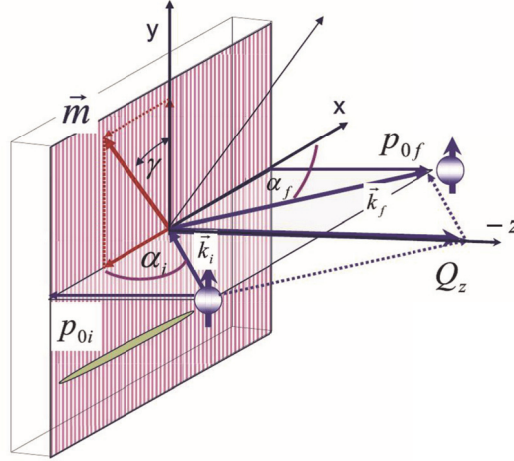


Рис. 8.3.1. Кинематическая схема скользящего падения [Топерверг, 2015].

Интегрирование в (8.3.6) и (8.3.7) теперь может быть упрощено при предположении, как и прежде, однородности распределения ПДР  $(nb)_{N,M}$  в плоскости поверхности пластины. Заметим, что при скользящем падении вектор рассеяния почти перпендикулярен к поверхности. Следовательно,  $\vec{m}_{\perp} = \vec{m}$  расположена в основном в плоскости  $(x, y)$ , а также вектор амплитуды рассеяния  $\vec{f}_M$  в (8.3.7) пропорционален единичному вектору  $\vec{m}$ , так что в (8.3.9)  $\vec{m}_{\perp}^2 = 1$ .

Окончательно, с учетом (8.3.16) и (8.3.17), выражение для сечения рассеяния принимает следующую структуру

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \approx S_b \{ R\delta(\alpha_i - \alpha_f) + T\delta(\alpha_i + \alpha_f) \} \delta(\theta_y), \quad (8.3.18)$$

где  $S_b = S \sin \alpha_i \approx S \alpha_i$  – «видимое» сечение рассеяния образца, т.е. отпечаток падающего пучка на плоскость, нормальную к волновому вектору падающего пучка,  $\delta$ -функции отражают тот факт, что рассеяние сконцентрировано либо в

направлении зеркального отражения, когда  $\alpha_f = \alpha_i$ , либо в направлении прошедшего пучка, когда  $\alpha_f = -\alpha_i$ .

В уравнении (8.3.18) введены безразмерные коэффициенты отражения  $R = |r_{M,N}|^2$  и прохождения  $T = |t_{M,N}|^2$ , выраженные через соответствующие амплитуды отражения  $r_{M,N}$  или амплитуды прохождения  $t_{M,N}$ . В БП амплитуда отражения определяется выражением

$$r_{M,N} = \frac{1}{2} \left( \frac{q_c^{N,M}}{q} \right)^2 \sin(q_z d/2), \quad (8.3.19)$$

где  $q_c^{N,M} = 4\sqrt{\pi\rho^{N,M}}$ . При тех же условиях  $t_{M,N} \approx 1$ , что выглядит как нарушение закона сохранения полного потока. Однако волна, рассеянная в направлении распространения падающей волны, как было отмечено ранее, интерферирует с прошедшей волной в результате действия потенциала рассеяния. Вычисление этой интерференции во втором порядке БП позволяет удовлетворить правила сумм (8.3.14).

Из (8.3.19) следует, что в БП сечение рассеяния зеркального отражения пропорционально  $(S\alpha_i)(q_c^{N,M}/q_z)^4$ , т.е. возрастает пропорционально длине волны нейтрона как  $\lambda^4$  и расходится как  $\alpha_i^{-3}$ , когда угол падения стремится к нулю. Формально, в БП полное сечение зеркального рассеяния, вычисленное по (8.3.18) может сравниться с площадью образца  $S = L_x L_y$ . Расходимость при  $\alpha_i \rightarrow 0$  в реальности не имеет место, так как приближение (8.3.10) нарушается при очень малых углах  $\alpha_i \leq \frac{d}{L_x} \ll 1$ , когда падающая волна в основном освещает площадь вблизи угла пластины. С другой стороны, сечение рассеяния может стать большим, так что БП нарушается даже при углах  $\alpha_i$ , при которых (8.3.18) еще справедливо. В этом случае нужно выходить за пределы БП и учитывать следующие члены теории возмущений или пытаться решать задачу точно каким-то образом. В принципе, это возможно благодаря тому, что выражение (8.3.18) записано только для зеркального отражения и, следовательно, задача сводится к решению одномерного у. Ш., в котором потенциал рассеяния может не зависеть от латеральных координат, например, в приближении пренебрежения краевых эффектов.

### 8.3.2. Формальная схема приближения искаженных волн

Приближение искаженных волн – это сокращенное название борновского приближения в методе искаженных волн [Тейлор, 1975]. Общепринятое сокращенное название – борновское приближение искаженных волн (БПИВ).

Это приближение применяется в тех случаях, когда потенциал



взаимодействия можно разбить на такие две части:

$$V = V_1 + V_2, \quad (8.3.20)$$

что для потенциала  $V_1$  амплитуду рассеяния можно вычислить (например, в борновском приближении), а влияние потенциала  $V_2$  мало. Суть метода довольно проста – построение функции Грина,  $T$ -матрицы и вектора состояния при помощи разложения в степенной ряд по взаимодействию необязательно начинать с решения уравнения при полном отсутствии взаимодействия. Представим гамильтониан в виде

$$H = H_0 + V_1 + V_2. \quad (8.3.21)$$

Пусть мы имеем решение  $\Psi_1$ , удовлетворяющее уравнению

$$(H + V_1)\Psi_1 = E\Psi_1. \quad (8.3.22)$$

Функция Грина этого уравнения равна

$$G_1 = [E - H_0 - V_1]^{-1}. \quad (8.3.23)$$

Тогда уравнение Липпмана-Швингера для волновой функции  $\Psi_2$  будет иметь вид

$$\Psi_2 = \Psi_1 + G_1 V_2 \Psi_2, \quad (8.3.24)$$

а для функции Грина:

$$G_2 = G_1 + G_1 V_2 G_2. \quad (8.3.25)$$

Поскольку взаимодействие  $V_1$  включает в себя основную часть взаимодействия, а  $V_2$  полагается малой добавкой к  $V_1$ , то разложение по  $V_2$  сходится быстрее, чем борновский ряд. Если ряд по степеням  $V_2$  оборвать на первом члене, то это и будет БПИВ. Итак, в БП мы в точное уравнение Липпмана-Швингера в правой части подставляем решение уравнения без взаимодействия (плоскую волну), то в БПИВ мы используем решение БП, которое теперь играет роль нулевого приближения относительно взаимодействия  $V_2$ .

Запишем эту схему для  $T$ -матрицы. Введем обозначения.  $T$ -матрица и стационарные состояния рассеяния в случае полного потенциала (8.3.20):

$$t(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) \text{ и } |\vec{p}, \pm\rangle. \quad (8.3.26)$$

Соответственно, для рассеяния на потенциале  $V_1$ :

$$t_1(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) \text{ и } |\vec{p}, \pm\rangle_1. \quad (8.3.27)$$

Здесь для компактности записи дираковское обозначение:  $|\vec{p}, +\rangle$  заменяет волновую функцию рассеяния  $\Psi_{\vec{p}}^+(x)$

$$\Psi_{\vec{p}}^+(x)|_{r \rightarrow \infty} = \frac{1}{2\pi\hbar} \left[ \exp(i\vec{p}\vec{x}) + f(E, \theta) \frac{\exp(ipr)}{r} \right]. \quad (8.3.28)$$

Знак «+» или «-» связан с правилом обхода полюса в функции Грина.

Уравнения Липпмана-Швингера для рассеяния на потенциале  $V_1$  имеет вид

$$|\vec{p}_f, -\rangle_1 = |\vec{p}_f\rangle + G^0(E_f - i\varepsilon)V_1|\vec{p}_f, -\rangle_1, \quad (8.3.29)$$

$$\langle \vec{p}_f | = {}_1\langle \vec{p}_f, - | - {}_1\langle \vec{p}_f, - | - V_1 G^0(E_f + i\varepsilon). \quad (8.3.30)$$

Точное определение полной  $T$ -матрицы:

$$t(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) = \langle \vec{p}_f | V | \vec{p}_i, + \rangle. \quad (8.3.31)$$

Подставляя выражение (8.3.30) в (8.3.31), получаем

$$t(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) = \langle \vec{p}_f, - | V | \vec{p}_i, + \rangle - {}_1\langle \vec{p}_f, - | V_1 G^0(E + i\varepsilon) V | \vec{p}_i, + \rangle.$$

Используя уравнение Липпмана-Швингера для полного потенциала  $V$ , можно переписать последний множитель  $G^0 V | \vec{p}_i, + \rangle$  в виде разности  $|\vec{p}_i, +\rangle - |\vec{p}\rangle$  и получить

$$t(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) = \langle \vec{p}_f, - | V_2 | \vec{p}_i, + \rangle + {}_1\langle \vec{p}_f, - | V_1 | \vec{p}_i \rangle,$$

или, ввиду того что последнее слагаемое точно равно величине  $t_1(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i)$ ,

$$t(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) = t_1(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) + {}_1\langle \vec{p}_f, - | V_2 | \vec{p}_i, + \rangle. \quad (8.3.32)$$

Этот точный результат известен под различными названиями. Его называют двухпотенциальной формулой, теоремой Ватсона или соотношением Гелл-Манна – Гольденберга. Он выражает  $T$ -матрицу для полного потенциала  $V = V_1 + V_2$  в виде суммы точной  $T$ -матрицы для одного потенциала  $V_1$  и определенного матричного элемента от потенциала  $V_2$ . При вычислении этого матричного элемента используются «минус»-состояние рассеяния  $\langle \vec{p}_f, - |$  для потенциала  $V_1$  и «плюс»-состояние  $|\vec{p}_i, +\rangle$  для полного потенциала.

Приближение искаженных волн получается из точной двухпотенциальной формулы, если пренебречь членами более высокого порядка, чем линейные, по малому потенциалу  $V_2$ . Поскольку первое слагаемое  $t_1(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i)$  не зависит от  $V_2$ , а второе слагаемое содержит первую степень потенциала  $V_2$  в виде явного множителя, переход к указанному приближению означает, что в состоянии  $|\vec{p}_i, +\rangle$  следует просто полностью пренебречь влиянием потенциала  $V_2$ . То есть, полагая  $|\vec{p}_i, +\rangle \approx |p, +\rangle_1$ , мы получаем в приближении искаженных волн

$$t(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) = t_1(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) + {}_1\langle \vec{p}_f, - | V_2 | \vec{p}_i, + \rangle_1. \quad (8.3.33)$$

Приближение искаженных волн можно сравнить с обычным борновским приближением

$$t(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i) \approx \langle \vec{p}_f | V_2 | \vec{p}_i \rangle \quad (8.3.34)$$

для единого потенциала  $V$ . Разница состоит в следующем: в приближении искаженных волн первое слагаемое  $t_1(\vec{p}_f \leftarrow \vec{p}_i)$  во всех порядках определяется

частью потенциала ( $V_1$ ); второе слагаемое представляет собой матричный элемент от потенциала  $V_2$ , вычисленный не по плоским волнам, а по «искаженным» волнам, т.е. по состояниям рассеяния, соответствующим потенциалу  $V_1$ . При такой терминологии потенциал  $V_1$  выступает в двух различных ролях: он рассеивает падающую частицу и, кроме того, искажает волны, которые рассеиваются на втором потенциале  $V_2$ . Поэтому второе слагаемое можно интерпретировать как борновское приближение рассеяния на потенциале  $V_2$  в присутствии искажающего потенциала  $V_1$ .

С математической точки зрения борновское приближение возникает из разложения амплитуды как функции от потенциала вблизи значения  $V=0$ ; приближение искаженных волн возникает из соответствующего разложения вблизи значения  $V=V_1$ . Точнее, к борновскому приближению приходят, заменяя  $V$  на  $\lambda V$ , производя разложение по степеням  $\lambda$  и пренебрегая членами порядка  $\lambda^2$  и выше; к приближению искаженных волн приходят, заменяя  $V$  на  $V_1 + \lambda V_2$  и снова производя разложение по степеням  $\lambda$  и опуская члены порядка  $\lambda^2$  и выше.

#### § 8.4. Поглощение нейтронов при рассеянии

Оптическая теорема (§ 2.1) связывает сечение рассеяния и сечение поглощения. Рассмотрим последнее подробнее.

Псевдопотенциал Ферми содержит феноменологическую константу – длину рассеяния, которая, вообще говоря, является комплексной величиной, что обычно не учитывается, поскольку мнимая часть длины рассеяния в большинстве случаев значительно меньше действительной части. Поэтому, когда говорят о псевдопотенциале Ферми, то подразумевают, как это и рассматривалось Ферми изначально, что длина рассеяния действительная величина. В тех случаях, когда возникает необходимость учесть мнимую часть, которая связана с поглощением нейтронов, то говорят о поправках к псевдопотенциалу Ферми или о комплексном оптическом потенциале. Здесь можно говорить об аналогии с оптической моделью ядра (§ 1.3). Необходимость учета мнимой части возникает, например, при прецизионных измерениях длины рассеяния методами нейтронной оптики (гл. 3).

Напомним (§1.3), что медленные нейтроны при столкновениях с атомными ядрами либо рассеиваются, либо поглощаются. Под поглощением имеются в виду реакции типа  $(n, \gamma)$ ,  $(n, p)$  или  $(n, \alpha)$ , в результате которых нейтрон не вылетает из ядра, а вылетает другая частица. Поглощение можно описать без привлечения многоканального формализма теории рассеяния введением комплексного оптического потенциала [Sears, 1989]:

$$V(\vec{r}) = V'(\vec{r}) - iV''(\vec{r}). \quad (8.4.1)$$

Рассмотрим связь мнимой части потенциала с поглощением нейтронов. Начнем с нестационарного уравнения Шредингера (у. III.)

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(\vec{r}, t)}{\partial t} = \left\{ -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + V(\vec{r}) \right\} \Psi(\vec{r}, t). \quad (8.4.2)$$

Введем величины

$$\begin{aligned} \rho &= |\Psi|^2 \\ \vec{J} &= \text{Re}\{\Psi^* \vec{v} \Psi\} \\ s &= \frac{2}{\hbar} \rho V'' \end{aligned} \quad (8.4.3)$$

здесь  $\vec{v}$  – групповая скорость нейтрона:

$$\vec{v} = \frac{1}{m} \vec{p} = \frac{\hbar}{im} \nabla. \quad (8.4.4)$$

Теперь из (8.4.2) получаем уравнение непрерывности

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div} \vec{J} = -s. \quad (8.4.5)$$

Величины в (8.4.5) имеют следующий смысл:  $\rho$  – плотность нейтронов,  $\vec{J}$  – плотность тока,  $s$  – утечка нейтронов.

После этих определений запишем полное число нейтронов в объеме  $V$ :

$$N = \int_V \rho d\vec{r}. \quad (8.4.6)$$

и, с учетом (8.4.5) получаем:

$$\frac{\partial N}{\partial t} = - \int_V (\text{div} \vec{J} + s) d\vec{r}. \quad (8.4.7)$$

Используем теорему Гаусса:

$$\int_V \text{div} \vec{J} d\vec{r} = \int_S \vec{J} \cdot \hat{n} dS. \quad (8.4.8)$$

где  $\hat{n}$  – единичный вектор в направлении нормали к поверхности  $S$  вокруг объема  $V$ ,  $dS$  – элемент поверхности. В результате получаем

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \int_S \vec{J} \cdot (-\hat{n}) dS - \int_V s d\vec{r}. \quad (8.4.9)$$

Из этого уравнения следует, что скорость возрастания числа нейтронов в объеме  $V$  равна скорости, с которой нейтроны протекают в объем через поверхность  $S$  за вычетом скорости поглощения нейтронов в объеме. Если  $V$  заполняет все пространство, то первый член в (8.4.9) зануляется и тогда получаем

$$\frac{\partial N}{\partial t} = - \int_V s d\vec{r}. \quad (8.4.10)$$

Если оптический потенциал действительная величина, то  $s = 0$  и  $\frac{\partial N}{\partial t} = 0$ .

Это означает, что  $N$  не меняется со временем и полное число нейтронов сохраняется. В этом случае  $\rho$  можно интерпретировать, как плотность вероятности. Если оптический потенциал комплексная величина, то число нейтронов не сохраняется и тогда  $\rho$  имеет смысл плотности числа нейтронов.

Получим сечение поглощения  $\sigma_a$ . Оно определяется как среднее число поглощенных за единицу времени нейтронов, отнесенное к падающему потоку:

$$\sigma_a = \frac{1}{J} \int_V s d\vec{r}. \quad (8.4.11)$$

Так как  $\rho$  не зависит от времени, то и, следовательно, из (8.4.9) получаем

$$\sigma_a = \int_S \vec{J}' \cdot (-\hat{n}) dS. \quad (8.4.12)$$

где  $\vec{J}'$  – полная плотность тока, включая падающий и рассеянные потоки.

Чтобы вычислить  $\sigma_a$ , будем полагать, что объем  $V$  заключен в сферу с радиусом  $r$  и  $r \rightarrow \infty$ . Тогда получаем выражение для сечения поглощения

$$\sigma_a = -\frac{r^2}{J} \int_{4\pi} \vec{J}' \cdot \hat{r} d\Omega. \quad (8.4.13)$$

Используя разложение по парциальным волнам (2.2.12), получаем выражение для сечения поглощения через матрицу рассеяния:

$$\sigma_a = \frac{\pi}{k^2} (1 - |S_0|^2), \quad S_0 = \exp(2i\delta_0). \quad (8.4.14)$$

где  $\delta_0$  – сдвиг фазы  $s$  – рассеяния, которая при наличии поглощения комплексна.

Поэтому и длина рассеяния будет комплексна:

$$b = b' + ib''. \quad (8.4.15)$$

При  $k \rightarrow 0$ , согласно (2.2.14) и (2.2.15)  $\delta_0 = -bk$  и

$$S_0 \approx 1 + 2i\delta_0 = 1 - 2ibk, \quad (8.4.16)$$

где  $b$  определена формулой (8.4.15). Подставляя (8.4.16) в (8.4.14), получаем

$$\sigma_a \approx \frac{\pi}{k^2} [1 - (1 - 4|b''|k + \dots)] = \frac{4\pi}{k} |b''|. \quad (8.4.17)$$

То есть в пределе  $k \rightarrow 0$  сечение поглощения определяется мнимой частью длины рассеяния и, в отличие от сечения рассеяния, зависит от  $k$ . Причем, зависимость от  $k$  обратно пропорциональная и, следовательно, обратно пропорциональная от скорости нейтрона  $v$ .

Заметим, что закон  $1/v$  был получен эвристически [Ферми, 1971, т. 1]. В то время еще не знали, что длина рассеяния комплексная величина и что коэффициент пропорциональности в законе  $1/v$  определяется мнимой ее частью. Формула (2.2.11) определяет сечение рассеяния и псевдопотенциал Ферми,

который, стало быть, нарушает оптическую теорему (2.2.14). Этот недостаток псевдопотенциала не имеет существенного значения в большинстве случаев рассеяния медленных нейтронов, поскольку для большинства нуклидов  $b'' \leq 10^{-4} b'$ . Если это не так, то надо использовать общую теорию. Отметим, однако, что поглощение, в более общем случае надо говорить об утечке, когерентных нейтронных волн может происходить не только за счет ядерных реакций, но также при наличии диффузного рассеяния. Последнее обстоятельство может иметь большое значение при рассеянии при скользящем падении.

Так как  $\sigma_a \geq 0$  по определению, то  $b'' \geq 0$ . С другой стороны  $b'$  может быть и положительной и отрицательной. Если оптический потенциал отталкивающий, то  $b'$  положительна. Если  $V(r)$  притягивающий, то  $b'$  опять, как правило, положительна; она отрицательна только, если  $V(r)$  – слабый потенциал в том смысле, что он не имеет связанных состояний. Поскольку  $V(r)$  в действительности является сильно притягивающим потенциалом, можно ожидать, что  $b'$  будет положительным для большинства нуклидов. Из экспериментов известно, что только у отдельных нуклидов, как, например,  $^1\text{H}$ ,  $^7\text{Li}$ ,  $^{48}\text{Ti}$ ,  $^{55}\text{Mn}$  и некоторых других  $b'$  отрицательна. Таким образом, псевдопотенциал Ферми (3.2.16) обычно отталкивающий, даже в том случае, когда полный оптический потенциал притягивающий.

Картина меняется в случае нескольких тяжелых нуклидов, таких как  $^{113}\text{Cd}$ , у которого имеется резонанс ( $n, \gamma$ ) при тепловых энергиях. В этом случае рассмотрение рассеяния и поглощения в приближении оптического потенциала хотя, в принципе, и возможно, но выглядит искусственным, потому что потенциал  $V(r)$  в этом случае сильно зависит от энергии падающих нейтронов. Вблизи от резонанса ( $n, \gamma$ ) амплитуда рассеяния  $f(\theta)$  в виде формулы Брейта-Вигнера (1.3.8), а также  $\sigma_s$  и  $\sigma_a$  сильно зависят от  $k$ . Об этом надо помнить при использовании в экспериментах вторичного излучения от ядерных реакций.

### § 8.5. О предельных переходах в теории рассеяния

В теории рассеяния есть очень важный вопрос о том, как совершаются предельные переходы при устремлении размеров системы  $L$  к бесконечности и устремлении к нулю параметра  $\varepsilon$ , характеризующего включение взаимодействия. Этот вопрос, как правило, в учебниках и монографиях не освещается, а в то же время результат зависит от того, в каком порядке совершаются эти предельные переходы. Этот вопрос в свое время был рассмотрен с полной ясностью в работе Гелл-Манна и Гольдбергера [Gell-Mann and Goldberger, 1953], краткое изложение соответствующего раздела мы сочли весьма полезным воспроизвести, сохраняя при этом оригинальные обозначения (см. также [Зубарев, 1971]). Заметим, что

работа Гелл-Манна и Гольдбергера идеологически связана с основополагающей работой [Lippmann and Schwinger, 1950], в которой, напомним, было изложено формальное обоснование теории Ферми рассеяния медленных нейтронов<sup>\*)</sup>.

При квантовомеханическом описании рассеяния полный гамильтониан сталкивающихся частиц  $H$  разделяют на две части  $K$  и  $V$ , где  $K$  – гамильтониан невзаимодействующих частиц,  $V$  – взаимодействие между ними. Предполагается, что  $V$  достаточно быстро стремится к нулю при удалении частиц. Ищется вероятность перехода в единицу времени из одного свободного состояния в другое.

Полная система описывается уравнением Шредингера

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(t)}{\partial t} = (K + V) \Psi(t). \quad (8.5.1)$$

Существенная особенность задачи состоит в том, что взаимодействие  $V$  существует в любой момент времени, хотя процесс рассеяния происходит между состояниями без взаимодействия.

В отсутствие взаимодействия у.Ш. имеет вид

$$i\hbar \frac{\partial \Phi(t)}{\partial t} = K \Phi(t), \quad (8.5.2)$$

а его стационарные решения есть

$$\Phi_i(t) = \Phi_i \exp\left(-\frac{iE_i}{\hbar} t\right). \quad (8.5.3)$$

Требуется вычислить дифференциальное эффективное сечение рассеяния из состояния  $\Phi_j$  в состояние  $\Phi_i$  под влиянием взаимодействия  $V$ . Начальное состояние  $\Phi_j$  используется для характеристики истинного состояния  $\Psi_j$  реальной системы. Зная  $\Psi_j(t)$ , мы можем найти вероятность того, что к моменту  $t$  система переходит в одно из конечных состояний  $\Phi_i$ .

Мы обсудим сейчас вопрос, как правильно формулировать граничные условия рассеяния к уравнению Шредингера (8.5.1). Пусть мы наблюдаем процесс рассеяния в момент  $t=0$ . Нужно математически формулировать физическую процедуру приготовления квантовомеханического состояния  $\Psi_j$  к моменту перехода  $t=0$ , т.е. при  $t < 0$  (фиксация энергии и направления пучка).

Если положить просто, что в некоторый определенный момент времени  $t=T$ , предшествующий столкновению, волновая функция  $\Psi_j$  была равной волновой функции свободного состояния

$$\Psi_j(t) = \exp\left(-\frac{iH}{\hbar}(t-T)\right) \Phi_j(t), \quad H = K + V,$$

<sup>\*)</sup> Вопрос о порядке предельных переходов носит весьма общий характер. Так, он является основным и в неравновесной статистической механике [Зубарев, 1971] (см. гл. 4).

то такое граничное условие вносит нефизический элемент «мгновенного» включения взаимодействия  $V$  при  $t=T$ . В действительности взаимодействие включается постепенно, поэтому подобные граничные условия неудобны.

Можно наложить граничные условия иначе, представив падающий цуг волн как среднее за некоторый промежуток времени  $\tau$  в прошлом

$$\frac{1}{\tau} \int_{-\tau}^0 \exp\left(-\frac{i}{\hbar} H(t-T)\right) \Phi_j(T) dT$$

и устремив  $\tau$  к бесконечности в конце вычислений, т.е. произвести операцию «сглаживания» по времени. Такое граничное условие также неудобно, так как приводит к недостаточно хорошо определенным выражениям, требующим дополнительных процедур для уточнения их смысла.

Наиболее удобное граничное условие состоит в том, что волновая функция  $\Psi_j$  при  $t < 0$  полагается равной

$$\Psi_j^{(\varepsilon)}(t) = \varepsilon \int_{-\infty}^0 \exp(\varepsilon T) \exp\left(-\frac{i}{\hbar} H(t-T)\right) \Phi_j(T) dT, \quad (8.5.4)$$

где  $\varepsilon \rightarrow +0$  в конце вычислений. При этом мы также производим «сглаживание» по времени, так как

$$\varepsilon \int_{-\infty}^0 \exp(\varepsilon T) dT = 1,$$

но множитель  $\exp(\varepsilon T)$  выделяет «прошлое», поэтому усреднение (8.5.4) имеет «причинный» характер.

Следует, однако, соблюдать осторожность, так как кроме  $\varepsilon \rightarrow 0$  нужно совершить еще и другой предельный переход  $L \rightarrow \infty$  (функции  $\Phi_i$  нормированы на единицу в большом объеме  $L^3$ ). Время включения взаимодействия  $\tau$  имеет порядок величины  $\varepsilon^{-1}$  и не может быть больше времени распространения волнового пакета на длину  $L$ , т.е. величины  $L/v$ , где  $v$  – групповая скорость,

$$\varepsilon^{-1} \ll L/v;$$

следовательно, величина  $\varepsilon^{-1} L^3$  при  $L^3 \rightarrow 0$ ,  $\varepsilon^{-1} \rightarrow \infty$  должна стремиться к нулю. Это означает, что сначала нужно делать предельный переход  $L^3 \rightarrow \infty$ , а уже затем  $\varepsilon \rightarrow 0$ .

Условие (8.5.4) вместе с указанным выше правилом предельных переходов  $L \rightarrow \infty$ ,  $\varepsilon \rightarrow 0$  обеспечивает отбор правильных запаздывающих причинных решений уравнения Шредингера. В самом деле, при  $\varepsilon^{-1} < L/v$  исключаются волны, отраженные от границ системы, т.е. сходящиеся волны, так как длина цуга волн во времени  $\varepsilon^{-1}$  короче необходимого времени его распространения на длину  $L$ . Большое удобство граничного условия (8.5.4) состоит в том, что условие причинности накладывается более автоматически, без детального анализа



расходящихся волн. Граничное условие (8.5.4) можно обосновать методом волновых пакетов. Его смысл состоит в отборе запаздывающих решений.

Вычислим теперь вероятность квантовых переходов между состояниями в зависимости от времени. Вероятность того, что система, которая описывается волновой функцией  $\Psi_j(t)$ , к моменту  $t$  находится в состоянии  $\Phi_i$ , согласно основным правилам квантовой механики равна

$$w_{ij}(t) = |f_{ij}(t)|^2 N_j^{-1}, \quad (8.5.5)$$

где

$$f_{ij}(t) = (\Phi_i^*(t) \Psi_j(t)), \quad (8.5.5a)$$

– амплитуда вероятности перехода,

$$N_j = (\Psi_j^*(t) \Psi_j(t)), \quad (8.5.5b)$$

– нормировочная постоянная, не зависящая от времени из-за эрмитовости гамильтониана.

Уравнение (8.5.4) с учетом (8.5.3) можно записать в виде

$$\Psi_j(t) = \exp\left(-\frac{iHt}{\hbar}\right) \varepsilon \int_{-\infty}^0 \exp(\varepsilon T) \exp\left(\frac{i}{\hbar}(H - E_j)T\right) \Phi_j dT \quad (8.5.6)$$

или, после выполнения интегрирования по  $T$ ,

$$\Psi_j(t) = \exp\left(-\frac{i}{\hbar}Ht\right) \frac{\varepsilon}{\varepsilon + \frac{i}{\hbar}(H - E_j)} \Phi_j. \quad (8.5.7)$$

Функция  $\Phi_j$  удовлетворяет уравнению

$$(H - E_j)\Phi_j = V\Phi_j, \quad (8.5.8)$$

поэтому уравнение (8.5.7) для  $t=0$  можно записать в виде

$$\Psi_j(0) = \Phi_j + \frac{1}{(E_j - H) + i\varepsilon\hbar} V\Phi_j. \quad (8.5.9)$$

Вместо явного выражения для  $\Psi_j(0)$  (8.4.9) можно записать для него эквивалентное уравнение Липпмана-Швингера

$$\Psi_j(0) = \Phi_j + \frac{1}{(E_j - K) + i\varepsilon\hbar} V\Psi_j(0). \quad (8.5.10)$$

Итерация уравнения (8.5.10) дает ряд по степеням  $V$ . Множитель

$$G^+(E_j) = \lim_{\varepsilon \rightarrow +0} \frac{1}{(E_j - K) + i\varepsilon\hbar}$$

имеет смысл запаздывающей функции Грина.

С помощью (8.5.10) получим для амплитуды перехода выражение

$$f_{ij}(0) = \delta_{ij} + \frac{1}{(E_j - E_i) + i\varepsilon\hbar} R_{ij}(\varepsilon), \quad (8.5.11)$$

где

$$R_{ij}(\varepsilon) = (\Phi_i^* V \Psi_j(0)) \quad (8.5.12)$$

– матрица реакции. Уравнение (8.5.11) удобно тем, что показывает явно наличие сингулярности у  $f_{ij}$  при  $E_i = E_j$  и  $\varepsilon \rightarrow 0$ .

Оператор  $R_{ij}(\varepsilon)$  является гладкой функцией энергии после перехода к пределу, вся сингулярность содержится в множителе

$$\frac{1}{(E_j - E_i) + i\varepsilon\hbar}.$$

Однако операцию предельного перехода  $L^3 \rightarrow \infty$  еще нельзя применить к  $R_{ij}(\varepsilon)$ , так как он, вследствие нормировки  $\Phi_i$  на единицу в объеме  $L^3$ , пропорционален  $L^{-3}$ . Поэтому удобно ввести оператор

$$\lim_{\substack{L \rightarrow \infty \\ \varepsilon \rightarrow +0}} R_{ij}(\varepsilon) L^3 = \mathfrak{R}_{ij}, \quad (8.5.13)$$

уже не имеющий сингулярностей при  $E_i = E_j$ .

Для вычисления производной от  $f_{ij}$  при  $t = 0$  запишем (8.5.5a) в виде

$$f_{ij}(t) = \left( \Phi_i^* \exp\left(\frac{i}{\hbar}(E_i - H)t\right) \Psi_j(0) \right), \quad (8.5.14)$$

откуда следует, что

$$f_{ij}(0) = \frac{i}{\hbar} (\Phi_i^* (E_i - H) \Psi_j(0)), \quad (8.5.15)$$

или, с использованием (8.4.8),

$$f_{ij}(0) = -\frac{i}{\hbar} (\Phi_i^* V \Psi_j(0)) = -\frac{i}{\hbar} R_{ij}(\varepsilon). \quad (8.5.15a)$$

Это соотношение оправдывает название  $R_{ij}$  как матрицы реакции, так как она пропорциональна скорости изменения амплитуды перехода  $f_{ij}$ .

Из (8.5.11) и (8.5.15a) следует выражение для скорости изменения модуля амплитуды перехода:

$$\left[ \frac{d}{dt} |f_{ij}(t)|^2 \right]_{t=0} = \frac{1}{\hbar} 2\delta_{ij} \operatorname{Im} R_{ij} + \frac{2\varepsilon}{(E_j - E_i)^2 + \varepsilon^2 \hbar^2} |R_{ij}(\varepsilon)|^2. \quad (8.5.16)$$

Остается вычислить нормировочную постоянную  $N_j$ . Из условия полноты системы функций  $\Phi_j$  с использованием (8.5.5a) следует, что

$$\sum_i |f_{ij}|^2 = N_j. \quad (8.5.17)$$

Из (8.5.16) и (8.5.17) с учетом того, что постоянная нормировки  $N_j$  не зависит от времени, следует

$$\frac{2}{\hbar} \operatorname{Im} R_{ij}(\varepsilon) + \sum_i \frac{2\varepsilon}{(E_j - E_i)^2 + \varepsilon^2 \hbar^2} |R_{ij}(\varepsilon)|^2 = 0. \quad (8.5.18)$$

Из (8.5.17) и (8.5.11) получим для  $N_j$  выражение

$$N_j = 1 + \frac{2}{\varepsilon \hbar} \operatorname{Im} R_{ij}(\varepsilon) + \sum_i \frac{2\varepsilon}{(E_j - E_i)^2 + \varepsilon^2 \hbar^2} |R_{ij}(\varepsilon)|^2 \quad (8.5.19)$$

или с учетом (8.5.18)

$$N_j = 1 + \frac{1}{\varepsilon \hbar} \operatorname{Im} R_{ij}(\varepsilon). \quad (8.5.19a)$$

Замечая, что  $R_{ij}$  имеет порядок  $L^{-3}$ , получим, что при нашем двойном предельном переходе  $N_j$  стремится к единице.

Дифференциальное эффективное сечение перехода  $j \rightarrow i$  ( $i \neq j$ ), равно вероятности перехода в единицу времени (8.5.16), деленной на поток  $vL^{-3}$ , где  $v$  – относительная скорость сталкивающихся систем. Поэтому из (8.5.16) следует, что

$$\sigma_{ij} = \lim_{\varepsilon \rightarrow +0} \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{2\varepsilon}{(E_j - E_i)^2 + \varepsilon^2 \hbar^2} |R_{ij}(\varepsilon)|^2 L^3 v^{-1}. \quad (8.5.20)$$

Множитель

$$\frac{2\varepsilon}{(E_j - E_i)^2 + \varepsilon^2 \hbar^2}$$

при предельном переходе  $\varepsilon \rightarrow 0$  стремится к  $\frac{2\pi}{\hbar} \delta(E_j - E_i)$ . Конечные состояния  $j$  лежат в непрерывном спектре, поэтому наблюдаются переходы не в данное состояние  $i$ , а в малый интервал конечных состояний, поэтому следует усреднить (8.5.20) по малому интервалу конечных состояний. Эта операция соответствует «крупноструктурному» огрублению в статистической механике. При таком усреднении  $\delta(E_j - E_i)$  снимается и вместо нее входит  $\rho(E_j)L^3$  – плотность состояний в импульсном пространстве в объеме  $V$  на единичный интервал энергий при энергии  $E_j$ . Окончательно

$$\sigma_{ij} = 2\pi |\Re_{ij}|^2 \rho(E_j) v^{-1}, \quad (8.5.21)$$

где  $\sigma_{ij}$  уже рассчитана на малый интервал конечных состояний, обычно на элемент телесного угла.

До сих пор мы предполагали, что  $j \neq i$ , начальное состояние не совпадает с конечным. Очевидно, что одно-единственное состояние не может влиять на вычисленную нами вероятность перехода, но изменение  $w_{jj}$  во времени существенно для учета изменения заполнения начального уровня.

Из уравнения (8.5.16) при  $i = j$  следует

$$N_j \frac{d}{dt} w_{jj} \Big|_{t=0} = \frac{1}{\hbar} \operatorname{Im} R_{jj}(\varepsilon) + \frac{2\varepsilon}{\varepsilon \hbar} |R_{jj}(\varepsilon)|^2. \quad (8.5.22)$$

Теперь, наоборот, в пределе  $L \rightarrow \infty$ ,  $\varepsilon \rightarrow +0$  второй член в (8.5.22) исчезающе мал по сравнению с первым.

Переходя в (8.5.18) к пределу  $\varepsilon \rightarrow +0$ , получим

$$\frac{-2 \operatorname{Im} \mathfrak{R}_{jj}}{L^3} = \frac{1}{L^3} \sum_{i \neq j} \frac{2\pi}{L^3} |\mathfrak{R}_{ij}|^2 \delta(E_j - E_i), \quad (8.5.23)$$

т.е. соотношение

$$\sum_{i \neq j} \sigma_{ij} = -\frac{2}{v} \operatorname{Im} \mathfrak{R}_{jj}, \quad (8.5.24)$$

дающее связь между мнимой частью матрицы рассеяния и полным эффективным сечением. Это соотношение, вытекающее из сохранения нормировки, носит название оптической теоремы.

### Рекомендуемая литература к главе 8

Балашов В.В. (2012), *Квантовая теория столкновений*, М.: МГУ, 2-е изд.

Ньютон Р. (1969), *Теория рассеяния волн и частиц*, М.: Мир.

Sears V.F. (1989), *Neutron optics. An Introduction to the Theory of Neutron Optical Phenomena and Their Application*, NY – Oxford: Oxford Univ. Press.

Toperverg B.P. (2015), *Phys. of Metal and Metallography*, **116**, № 13, 1337.

## ЧАСТЬ II. ПОЛУЧЕНИЕ, ФОРМИРОВАНИЕ ПУЧКОВ И РЕГИСТРАЦИЯ НЕЙТРОНОВ

### ГЛАВА 9. ИСТОЧНИКИ НЕЙТРОНОВ

Существует несколько типов ядерных реакций, с помощью которых могут быть получены свободные нейтроны, необходимые для решения научных или технологических задач. Тип реакции и техническое оформление процесса получения нейтронов в источнике определяют характеристики нейтронного излучения, основными из которых являются его интенсивность, зависимость от времени и распределение по энергии. Кроме того, иногда важно учитывать наличие сопутствующих излучений и угловое распределение нейтронного потока. Обычно выделяют три типа источников нейтронов: портативные изотопные, ядерные реакторы и на основе ускорителей заряженных частиц с мишенью.

В портативных изотопных источниках используются реакция  $(n, \alpha)$ , индуцированная естественным радиоактивным нуклидом (Po-210, Rn-222, Ra-226, Pu-239, Am-241) и спонтанное деление (Cm-244, Cf-252). Излучатель альфа-частиц смешивается с порошком, обычно, Be-9, реакция с которым дает один нейтрон и выход энергии 5.7 МэВ. Источник представляет собой компактное устройство (цилиндр с типичными размерами  $\varnothing 20 \times 40$  мм), обеспечивающее интенсивность изотропного нейтронного излучения от  $\sim 10^6$  до  $\sim 10^8$  н/с. В реакции спонтанного деления на каждый акт деления приходится 3-4 нейтрона. Такой источник может быть очень эффективным. Например, Cf-252 с периодом полураспада 2.6 лет имеет выход нейтронов  $2.7 \cdot 10^{12}$  н/(г с). Изотопные источники используются для тестирования детекторов нейтронов, градуировки дозиметров, каротажа нефтяных скважин и др. Для экспериментов по рассеянию медленных нейтронов используются более интенсивные реакторные и ускорительные источники.

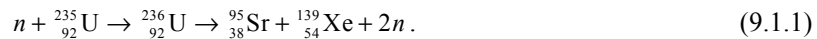
Исторически первыми интенсивными источниками нейтронов были ядерные реакторы, в которых непрерывный поток нейтронов генерировался в процессе деления урана. До сих пор они остаются основными интенсивными источниками нейтронов для физических исследований, хотя еще в 50-х годах было предложено использовать ускорители для этой цели. Первый ядерный реактор был создан под руководством Э.Ферми в 1942 г. в Чикаго (США) (см. Введение), интенсивные импульсные источники нейтронов на базе электронных ускорителей начали создаваться в Харуэле (Великобритания) в конце 1950-х годов. Нет каких-либо весомых преимуществ реакторов перед ускорителями, но разрыв в 10 лет и бурное развитие реакторной техники во второй половине 1950-х годов определили путь развития базы для нейтронных исследований в то время.

## § 9.1. Исследовательские ядерные реакторы со стационарным потоком

### 9.1.1 Физические принципы работы ядерного реактора

В ядерных реакторах используются делящиеся после захвата нейтрона ядра обычно это уран-235 или плутоний-239 (см. Введение и § 1.3). Возбужденное ядро распадается на две части (два осколка) с числом нейтронов, близким к магическим числам 50 и 82 (такие ядра наиболее устойчивы к ядерным превращениям), поэтому в большинстве случаев происходит деление на два осколка с отношением масс около 1.5. Осколки – новые составные ядра, находятся в возбужденном состоянии, при релаксации которого излучаются нейтроны. Происходит это в два этапа: через примерно  $10^{-15}$  с (*мгновенный процесс*) и через несколько секунд (*запаздывающий процесс*) после деления. Первый определяется сильным и электромагнитным взаимодействиями, второй –  $\beta$ -распадом радиоактивных осколков деления.

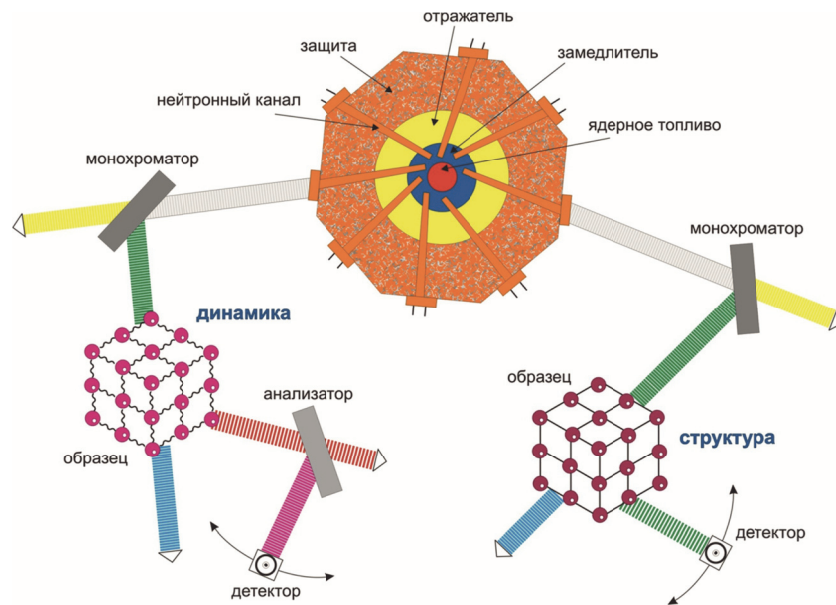
В результате мгновенного процесса «испарения» испускается в среднем 2.5 (2 или 3) нейтрона с поверхности возбужденных осколков – *мгновенные нейтроны*. Распределение мгновенных нейтронов по энергиям (*спектр мгновенных нейтронов деления или спектр деления*) в лабораторной системе хорошо аппроксимируется распределением Максвелла с максимумом около 1 МэВ. Их средняя энергия равна примерно 2 МэВ. Примером наиболее вероятной реакции деления составного ядра U-236 с учетом испускания двух мгновенных нейтронов может служить реакция вида:



В этой реакции легкий осколок,  $A = 95$ , приобретает кинетическую энергию примерно 100 МэВ, а тяжелый,  $A = 139$ , – около 67 МэВ. Суммарная кинетическая энергия осколков равна примерно 170 МэВ, а полная энергия деления в этом случае составляет около 200 МэВ. Энергия примерно 30 МэВ распределяется между другими продуктами деления: нейтроны, мгновенное гамма-излучение, электроны и антинейтрино бета-распада осколков, гамма-излучение осколков и продуктов их распада.

Из 2.5 нейтронов один в течение его времени жизни до  $\beta$ -распада после замедления до необходимой энергии может быть захвачен делящимся ядром, что обеспечивает возможность самоподдерживающейся цепной реакции. Из оставшихся нейтронов в среднем 0.5 нейтрона поглощается неделящимися материалами в активной зоне и в ее окружении. Остается один нейтрон, который может быть использован для облучений или выведен из реактора для экспериментов. Антинейтрино уносит 10 МэВ. Таким образом, примерно 190 МэВ энергии на один произведенный мгновенный нейтрон выделяется в виде тепла.

*Запаздывающие нейтроны*, доля которых меньше 1% общего числа испускаемых нейтронов (например, в реакции (9.1.1) их будет примерно 0.6 %) появляются в результате  $\beta$ -распада радиоактивных ядер-осколков, возбуждение которых не было полностью снято испарением нейтронов. Ядра с близкими временами жизни (временами испускания запаздывающих нейтронов) объединяются в группы. Их может быть от одной до шести, а время жизни может быть от долей до десятков секунд. Каждая группа характеризуется долей или относительным выходом запаздывающих нейтронов  $\beta$ . В *однотипном приближении* вводят *эффективную долю запаздывающих нейтронов*  $\beta_{\text{эф}}$ , которую определяют как сумму  $\beta$  по многим группам, в общем случае по всем материнским ядрам – ядрам, с которых начинается цепочка распадов до достижения стабильности. В цепочке может быть от одного до шести распадов. Каждое ядро испускает запаздывающий нейтрон с определенной энергией в интервале от 0.1 до 1.6 МэВ. Средняя энергия спектра запаздывающих нейтронов равна примерно 0.5 МэВ, приблизительно в четыре раза меньше, чем мгновенных. Поскольку  $\beta_{\text{эф}} \ll 1$ , спектр нейтронов деления определяется спектром мгновенных нейтронов, которые и обеспечивают протекание цепной реакции деления в ядерном реакторе. Запаздывающие нейтроны обеспечивают *возможность регулирования ее скорости*, что является существенным фактором в управлении реактором.



**Рис 9.1.1.** Схематическое изображение устройства исследовательского ядерного реактора на тепловых нейтронах. Для примера показаны два типа экспериментальных установок на выведенных пучках: спектрометр неупругого рассеяния для изучения динамики атомов в кристаллах и дифрактометр для изучения структуры кристаллов.

*Исследовательский ядерный реактор (ИЯР)* – это устройство, в котором производятся нейтроны для физических исследований в результате управляемой цепной реакции деления ядерного топлива, помещенного внутри реактора в *активной зоне*. Ядерное топливо в традиционных реакторах содержится в *тепловыделяющих элементах (ТВЭлах)* – цилиндрических трубках, обычно собираемых по несколько штук в *топливные кассеты (тепловыделяющие сборки, ТВС)*. Минимальная масса топлива, в которой возможна самоподдерживающаяся цепная реакция деления называют *критической массой*. На величину критической массы влияют замедлители и отражатели нейтронов. На рис. 9.1.1 показана упрощенная схема ИЯР на тепловых нейтронах стационарного действия. Показаны активная зона, замедлитель (обычно легкая или тяжелая вода), отражатель из материала с большим сечением рассеяния и малым сечением поглощения и каналы в защите экспериментального зала от излучений реактора для вывода нейтронов к экспериментальным установкам. В реакторах на быстрых нейтронах замедлителей в составе реакторной установки нет.

Управляемая цепная реакция деления предполагает, что число делящих нейтронов не меняется во времени. Это означает, что один нейтрон из появившихся при делении приводит к делению другого ядра, а остальные не участвуют в процессе деления. Они либо поглощаются в реакторе, либо выводятся наружу. Характеристической величиной цепной реакции деления является *коэффициент размножения  $k_{\infty}$*  нейтронов в однородной бесконечной среде, равный отношению числа нейтронов данного поколения к числу нейтронов предыдущего поколения при большом числе поколений. Для конкретной установки он называется *эффективным коэффициентом размножения нейтронов*:

$$k_{\text{эф.}} = \lim_{m \rightarrow \infty} n_m / n_{m-1}, \quad (9.1.2)$$

где  $m$  – номер *поколения нейтронов*. При  $k = 1$  (режим реакции называется *критическим*) цепная реакция идет *стационарно*, нейтроны из реактора выходят в каналы постоянным потоком. Такие реакторы называют *стационарными реакторами (steady state reactors)* или *реакторами с постоянным потоком*. При  $k < 1$  (режим *подкритический*) реакция затухает, при  $k > 1$  (режим *надкритический*) интенсивность реакции возрастает.

Время жизни нейтронов одного поколения лежит в интервале от  $10^{-4}$  до  $10^{-8}$  с, в зависимости от конкретной системы, что накладывает весьма жесткие ограничения на систему управления реактором: необходимо с большой точностью выдерживать условие критического режима. При небольшом отклонении, всего на 0.01, система резко уйдет в надкритический режим и почти мгновенно взорвется. Теперь мы можем уточнить определение критической массы, это – минимальная масса топлива, необходимая для выполнения условия критичности.



Введем еще один важный параметр – *реактивность системы*  $\rho = (k_{\text{эф.}} - 1) / k_{\text{эф.}}$ . Уменьшение  $k_{\text{эф.}}$  (например, при введении поглощающего стержня в активную зону) соответствует вводу *отрицательной реактивности*. Обратный случай соответствует вводу *положительной реактивности*. Реактивность измеряется в абсолютных и относительных единицах. Последние соответствуют эффективным долям  $\beta$  запаздывающих нейтронов. По традиции (со времен Э.Ферми) в качестве единицы измерения используют доллар и цент:  $1\$ = 1\beta$ ,  $1с = 0.01\$ = 0.01\beta$ .

### 9.1.2. Пример реактора со стационарным потоком

В качестве примера реактора со стационарным потоком рассмотрим реактор ПИК, сооружаемый в Петербургском институте ядерной физики им. Б.П.Константинова НИЦ «Курчатовский институт» в г. Гатчина Ленинградской области.



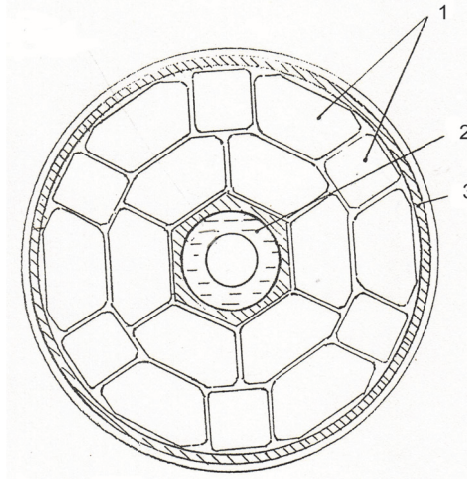
Рис. 9.1.2. Фото реакторного комплекса ПИК

Этот реактор имеет конструкцию, оптимальную для получения предельно возможной для стационарных реакторов плотности потока тепловых нейтронов, ее принцип используется в современных реакторах. Дело в том, что ядерные реакторы со стационарным потоком имеют ограничения для дальнейшего развития по получению более высоких выведенных потоков нейтронов, обусловленные технологическими причинами, связанными главным образом с отводом тепла. В этом смысле реактор ПИК, как и реактор HFR в Гренобле (см. следующий раздел), достигают предела потока выведенных нейтронов для

стационарных реакторов:  $(1 - 2) \cdot 10^{15} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ . Подробное описание реакторного комплекса ПИК представлено в четырехтомном издании [Аксенов и Ковальчук (ред.), 2014], здесь мы дадим краткую конкретизацию общей схемы, показанной на рис. 9.1.1.

Идея реактора ПИК впервые была опубликована в 1966 г. [Ерыкалов и др., 1966]. Реактор водо-водяной, корпусной, на промежуточных нейтронах (см. Введение, раздел «Медленные нейтроны»), со стационарной тепловой мощностью 100 МВт. Реактор оснащен каналами вывода пучков тепловых нейтронов со стартовой плотностью потока на уровне  $1.2 \cdot 10^{15} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  и тепловой ловушкой (наполненной обычной легкой водой) в центральном канале активной зоны для облучений с плотностью потока  $5 \cdot 10^{15} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ .

Для достижения максимального потока нейтронов при заданной мощности реактора нужно стремиться к малому объему активной зоны и хорошей утечки нейтронов из нее. При этом твэлы должны справляться со снятием максимальной удельной мощности. При средней мощности 100 МВт допустимая средняя по зоне нагрузка может быть 2 МВт/л. Тогда объем зоны 50 литров может обеспечить плотность нейтронного потока порядка  $10^{15} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  с поверхности замедлителя. Схема поперечного разреза активной зоны показана на рис. 9.1.3.



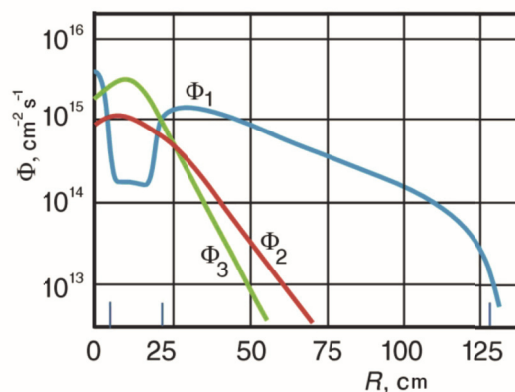
**Рис. 9.1.3.** Поперечный разрез активной зоны реактора ПИК [Ерыкалов и др., 1992].

1. Шестигранная и квадратная кассеты с твэлами. 2. Ловушка с центральным каналом. 3. Корпус реактора.

Активная зона реактора ПИК набирается из 12 шестиугольных и 6 квадратных кассет. Шестиугольная кассета содержит 241 твэл, квадратная – 161. В качестве топлива используется двуокись урана с 90% обогащением, в загрузке 27.2 кг U-235. Активная зона реактора ПИК относится к «недозамедленным» системам и обладает отрицательным температурным коэффициентом реактивности при уменьшении плотности воды и увеличении мощности, что обеспечивает в

значительной степени безопасность эксплуатации.

В качестве отражателя была выбрана тяжелая вода, которая обеспечивает наилучшее, по сравнению с другими замедлителями, отношение плотности потока тепловых нейтронов к мощности. В тяжелой воде длина диффузии тепловых нейтронов порядка метра. При большом объеме бака отражателя (диаметр 2.4 м, высота переменная 2 и 2.5 м) плотность потока тепловых нейтронов достаточно велика вдали от активной зоны, где фон быстрых и промежуточных нейтронов, а также  $\gamma$ -квантов мал (рис 9.1.4).



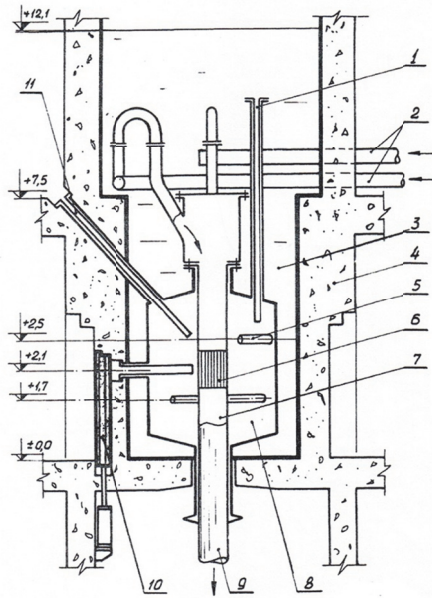
**Рис. 9.1.4.** Распределение плотности потока нейтронов в отражателе:  
 $\Phi_1$  – поток тепловых нейтронов,  $E < 0.6$  кэВ;  
 $\Phi_2$  – поток промежуточных нейтронов,  $0.6 < E < 5$  кэВ;  
 $\Phi_3$  – поток быстрых нейтронов,  $E > 5$  кэВ.

Активная зона размещена в корпусе реактора и охлаждается легкой водой под давлением. Корпус реактора в свою очередь помещен в бак отражателя, заполненный тяжелой водой (рис 9.1.5), который охлаждается тяжелой водой.

В баке отражателя размещаются экспериментальные каналы и источники холодных и горячих нейтронов (рис. 9.1.6).

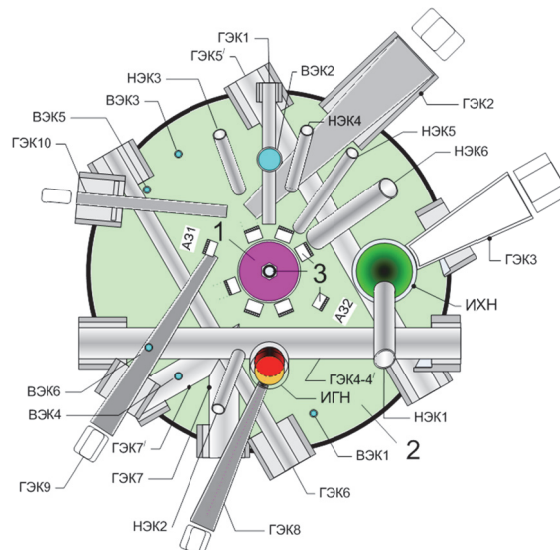
Реактор ПИК имеет 1 центральный, 10 горизонтальных, 6 наклонных и 6 вертикальных каналов для вывода пучков нейтронов и облучения образцов. Нейтронные системы позволяют транспортировать нейтроны к экспериментальным установкам, расположенным в нейтронном зале в бесфоновых условиях. Всего в трех экспериментальных залах комплекса возможно обеспечить до 50 позиций на пучках, на которых одновременно могут вести эксперименты различные исследовательские группы.

Физический пуск реактора ПИК был проведен в 2011 г. [Ковальчук и др., 2013], работы по выводу реактора на мощность были начаты в 2018 г. Энергетический пуск был проведен 8 февраля 2021 г. На время написания данной книги завершалось создание первой очереди приборной базы реакторного комплекса для проведения экспериментов на выведенных пучках.



**Рис. 9.1.5.** Схема вертикального разреза реактора ПИК [Ерыкалов и др., 1992].

1. Вертикальный канал. 2. Вход теплоносителя. 3. Шахта с водой. 4. Биологическая защита. 5. Горизонтальный экспериментальный канал. 6. Активная зона. 7. Сменный корпус. 8. Тяжеловодный отражатель. 9. Выход теплоносителя. 10. Шибер. 11. Канал в наклонный экспериментальный зал. Слева приведены расстояния от пола экспериментального зала в метрах.



**Рис. 9.1.6.** Схема экспериментальных каналов реактора ПИК:

1 – активная зона; 2 – отражатель  $D_2O$ ; 3 – рабочие органы системы управления и защиты. ИХН – источник холодных нейтронов, ИГН – источник горячих нейтронов. ГЭК, ВЭК, НЭК – горизонтальный, вертикальный, наклонный экспериментальные каналы, соответственно.

### 9.1.3. Современное состояние и тенденции развития реакторного парка

Наибольшее число реакторов со стационарным потоком нейтронов было создано в период с 1955 по 1960 гг. Это были реакторы первого поколения, которые создавались для наработки изотопов, облучений и радиационных исследований. После 1960 г. началось создание реакторов второго поколения, которые уже предназначались как для радиационных исследований, так и для исследований на нейтронных пучках. Первый реактор с непрерывным потоком третьего поколения, т.е. реактор, предназначенный только для пучковых исследований, был создан в 1965 г. в Брукхейвене (закрыт в 1996 г.), через 5 лет после создания пульсирующего реактора ИБР в Дубне, который с самого начала предназначался только для пучковых исследований.

Примерно до 1960 г. увеличение потока нейтронов происходило в той же степени, что и увеличение мощности реакторов, затем дальнейшее увеличение потока нейтронов стало опережать увеличение мощности реакторов. Это опережение особенно проявилось с начала 70-х годов, когда стали эффективно использоваться реакторы третьего поколения, такие как HFR в Институте Лауэ-Ланжевена (ИЛЛ) (Гренобль, Франция), ОРПНЕС в Лаборатории Леона-Бриллюэна (Сакле, Франция), ВВР-М в ПИЯФ РАН (Гатчина) и ИР-8 в РНЦ «Курчатовский институт» (Москва), ИБР-2 ОИЯИ (Дубна) и др.

В настоящее время в мире работает около тридцати исследовательских реакторов, на которых проводятся исследования на выведенных пучках нейтронов. При этом большинство из них – это реакторы, проработавшие более 40 лет, что близко к их естественному времени жизни, т.е. большинство реакторов нуждаются в модернизации или замене на новые.

В конечном счете, эффективность работы исследовательского реактора определяется работой экспериментальных установок (станций). В таблице 9.1.1 приведены примеры наиболее цитируемых стационарных реакторов третьего поколения и частично второго, используемых для исследований на выведенных пучках. Экспериментальные станции делятся согласно общепринятой классификации на пять типов: дифрактометры для упругого брэгговского и упругого диффузного рассеяния, установки для малоуглового рассеяния, рефлектометры, спектрометры для неупругого рассеяния и другие приборы. Последние включают в себя все, что не входит в предыдущие четыре категории. Установки для облучений и активационного анализа здесь не рассматриваются.

Как видно из таблицы 9.1.1, наиболее эффективными по всем показателям являются реактор HFR-ILL среди реакторов высокой мощности и реактор FRM II – среди реакторов средней мощности. Реактор HFR-ILL имеет наибольший абсолютный и удельный (приведенный к мощности) поток нейтронов и наиболее развитую инфраструктуру для проведения экспериментов. Конструкция реактора FRM II, которая разрабатывалась с учетом идей конструкции реактора ПИК, является, по-видимому, оптимальной для реакторов средней мощности.

Кроме технических характеристик, весьма существенным показателем является стоимость. Стоимость реактора в значительной мере определяется его средней мощностью, поэтому условной характеристикой, определяющей стоимость производимого нейтрона, можно считать отношение средней мощности к плотности потока. Еще один фактор – число экспериментальных установок на реакторе, чем оно больше, тем выше эффективность его использования. Можно сказать, тем дешевле один произведенный нейтрон. Из таблицы 9.1.1 видно, что и по этому параметру из всех реакторов выделяются реакторы HFR-ILL и FRM II.

С начала 1990-х годов число реакторов неуклонно уменьшается. В то же время за последние 30 лет наблюдался большой прогресс в ускорительной технике, которая имеет большие перспективы. Поэтому очевидно, что следующий этап в создании интенсивных источников нейтронов связан с использованием ускорителей, преимущественно протонных.

В то же время развитие реакторных источников нейтронов сохраняет свою актуальность по ряду причин. Во-первых, протонные синхротроны с необходимыми параметрами являются достаточно сложными и дорогими машинами. Во-вторых, практическая реализация мишенных устройств высокой мощности сталкивается с типичными реакторными проблемами, такими, как отвод тепла и радиационная стойкость конструкции, определяемая плотностью потока быстрых нейтронов в зоне мишени. И, наконец, в настоящее время имеется еще достаточно много работающих реакторов, имеющих перспективы развития.

**Таблица 9.1.1.** Наиболее часто упоминаемые в литературе источники нейтронов с непрерывным потоком (число приборов меняется со временем, поэтому данные последнего столбца играют лишь иллюстрацию распределения по типам рассеяния)

Реактор	Месторасположение	Начало работы/модернизация	Мощность, МВт	Поток $^{14}\text{Cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ $10^{-14}$	Нейтронные каналы (горизонтальные)	Замедлители (X – холодный, Г – горячий)	Приборы для рассеяния нейтронов					
							Дифр.	Малотрт.	Рефлект.	Неупр.	Другие	Полное число
OPAL	Австралия, Сидней	2007	20	2	10	1 X	4	3	1	4	1	13
WWR	Венгрия, Будапешт	1959/93	10	2.1	8	1 X	2	3	3	3	3	14
FRM II	Германия, Мюнхен	2005	20	8	20	1 X, 1 Г	6	4	3	8	2	23+7
Dhruva	Индия, Бомбей	1985	100	2	13	1 X	3	1	1	8	1	14
SARR	Китай, Пекин	2010	60	8	13	1 X	5	2	1	3	5	16
CMRR	Китай, Мьян-Янг	2012	20	2.4	8	1 X	3	2	1	2	3	11
HFR	Нидерланды, Петтен	1961/1970	45	1-24	12	-	3	1	0	2	1	7
ПИК	Россия, Гатчина	2024, план	100	45	16	2X, 2Г	5	2	2	-	3	до 50
HFIR	США, Ок-Ридж	1966	85	30	4	-	4	1	0	5	0	10
NBSR-NIST	США, Гейтсберг	1969/1985	20	4	24	1 X	2	4	3	7	8	24
HFR-ILL	Франция, Гренобль	1975/1995	58	15	26	2X, 1Г	14	6	4	15	8	47
LVR-15	Чехословакия, Ржеж	1957/1965	15	1	6	-	2	1	1	1	1	6
SINQ	Швейцария, Виллиген	1996	1	1	14	1X, 1Г	5	3	3	5	6	22
JRR-3M	Япония, Токай	1991	20	2	26	1 X	4	1	0	10	5	33

Аббревиатуры обозначают: OPAL – Open Pool Australian Light-water reactor, WWR – Water-Water Reactor, FRM II – Forschungsreaktor Munchen II, CARR – China Advanced Research Reactor, CMRR – China Mianyang Research Reactor, HFR – High Flux Reactor, ПИК – пучковый исследовательский корпусной реактор, HFR – High Flux Isotope Reactor, NBSR-NIST – Neutron Beam Split-core Reactor at the National Institute of Standards and Technology, HFR ILL – High Flux Reactor at ILL, LVR – Легководный исследовательский реактор (от чешского Lehkovodní vřzkovny reactor), JRR-3M – Japan Research Reactor 3M. Расшифровка остальных аббревиатур дана выше в тексте.



## § 9.2. Пульсирующие реакторы

### 9.2.1. Пульсирующие реакторы первого и второго поколения

В 1955 г. в г. Обнинске в Физико-энергетическом институте под руководством Д.И. Блохинцева приступили к разработке принципиально нового реактора – импульсного реактора периодического действия (пульсирующего реактора). До этого импульсные потоки нейтронов для ядерной спектроскопии создавались с помощью прерывателя пучка (прерыватель Ферми) на стационарных реакторах. Эффективность использования реактора, которая и без того была невысока, при этом сильно уменьшалась. Пульсирующий реактор мог решить эту проблему.

Пульсирующий реактор ИБР начал сооружаться в Дубне в 1957 году и был введен в эксплуатацию в 1960 году. Это был первый в мире реактор, в котором импульсы генерировались периодически с частотой 5 и 50 Гц за счет вращения части активной зоны -модулятора реактивности (МР) (рис. 9.2.1).

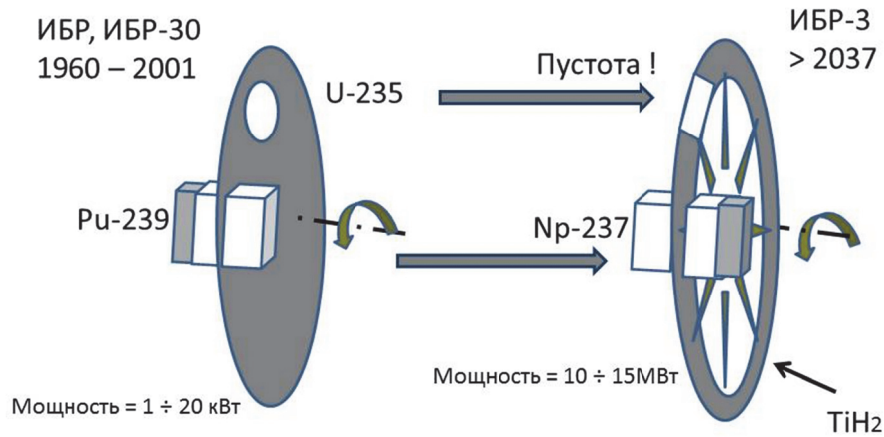


Рис 9.2.1. Принцип генерации импульсов в реакторах типа ИБР и в реакторе НЕПТУН.

При средней мощности реактора всего 1 кВт поток нейтронов был выше, чем на стационарных реакторах мощностью в 10 МВт с прерывателем. Полный обзор развития реакторов типа ИБР имеется в статье [Франк, 1972].

Успешная работа реактора ИБР и его модификаций стимулировала дальнейшее развитие этого направления. В середине 60-х годов появилось несколько новых проектов. Из всех предложений новых высокопоточных пульсирующих реакторов был реализован только проект реактора ИБР-2 [Ананьев и др., 1969; Шабалин, 1976], что стало возможным благодаря опыту работ с такими системами в Дубне и Обнинске. Пульсирующий реактор ИБР-2 (рис. 9.2.2), принятый в эксплуатацию в 1984 г., имел самый высокий в мире



импульсный поток тепловых нейтронов –  $10^{16} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$  при средней мощности 2 МВт. При этом мощность в импульсе равна 1860 МВт. В то же время, это исключительно экономичная установка – время эксплуатации активной зоны реактора составляет около 20 лет. Особенностью реактора ИБР-2 является сравнительно большая длительность импульса тепловых нейтронов: больше 300 мкс. Реактор ИБР-2 оказался весьма эффективным для проведения экспериментов по рассеянию методом времени пролета [Аксенов, 2009]. С 2006 по 2011 г. была проведена модернизация и в настоящее время на реакторе ИБР-2М реализуется обширная программа исследований по физике конденсированного состояния [Аксенов и др., 2016].

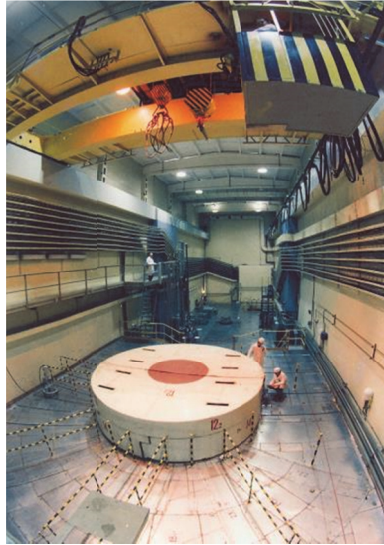
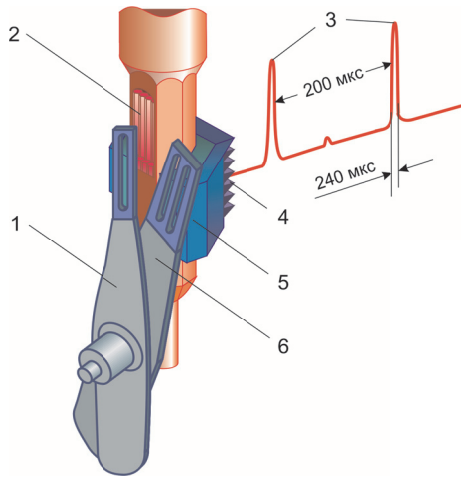


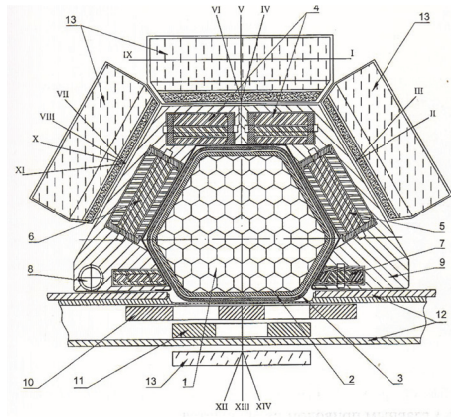
Рис. 9.2.2. Фотография технологического зала реактора ИБР-2М.

Главное и оригинальное отличие установки ИБР-2 от первого варианта ИБР состоит в периодической модуляции реактивности и создании импульсов мощности с помощью подвижного отражателя (рис. 9.2.3). Подвижный отражатель является сложным техническим устройством общей массой до 60 т. Он примыкает к наибольшей грани активной зоны и состоит из модулятора реактивности основного (МРО) и модулятора реактивности дополнительного (МРД). Собственно отражателем являются длинные выступы роторов в виде решетки, выполненной из никелевого сплава. МРО и МРД расположены соосно. Ротор МРО изготовлен из высокопрочной стали и вращается с частотой 10 Гц (600 об/мин), линейная эффективная скорость МРО относительно активной зоны равна 62,8 м/с. Дополнительный модулятор реактивности имеет аналогичную конструкцию и предназначен для модуляции реактивности с частотой 5 Гц (300 об/мин).



**Рис. 9.2.3.** Схема генерации импульсов мощности: 1 – дополнительный подвижный отражатель; 2 – активная зона; 3 – энергия импульсов; 4 – стационарный отражатель; 5 – водяной замедлитель; 6 – основной подвижный отражатель.

Импульс пиковой мощностью с потоком тепловых нейтронов на задней поверхности замедлителей свыше  $10^{16} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$  развивается при одновременном прохождении МРО и МРД вблизи зоны реактора. При этом длительность импульса – порядка 240 мкс. После вывода отражателей от зоны реактор находится в подкритическом состоянии до следующего импульса мощности. Средняя мощность реактора ИБР-2М при частоте повторения импульсов 5 Гц составляет 2 МВт. Длительность импульсов определяется двумя факторами: временем жизни быстрых нейтронов, а также конфигурацией и скоростью вращения роторов. Для основного подвижного отражателя в ИБР-2М она снижена в 2,5 раза, по сравнению с ИБР-2 (до 600 об/мин). Однако за счет встречного движения длительность импульса быстрых нейтронов сохраняется на уровне 200 мкс, но вместе с тем существенно (в 2,5 раза) возрастает ресурс отражателя (до 50 000 ч).



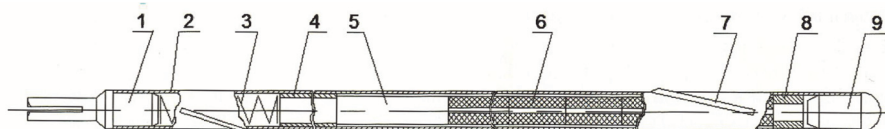
**Рис. 9.2.4.** Активная зона реактора ИБР-2М: 1 – активная зона; 2 – корпус реактора; 3 – страховочный кожух реактора; 4 – рабочие органы аварийной защиты; 5 – компенсирующий блок КО1; 6 – компенсирующий блок КО2; 7 – рабочий орган ручного регулятора РР; 8 – рабочий орган автоматического регулятора АР; 9 – матрица стационарного отражателя; 10 – лопасть основного модулятора реактивности МРО; 11 – лопасть дополнительного модулятора реактивности МРД; 12 – кожух модулятора реактивности ПО-3; 13 – водяные замедлители; I – XIV – направление экспериментальных каналов.

При установившемся режиме работы 2500 ч/год время использования топлива составит 20 – 25 лет.

Активная зона реактора (рис. 9.2.4) набрана из тепловыделяющих сборок (ТВС), предназначенных для размещения твэлов, организации надежного съема тепла с твэлов, загрузки и выгрузки из реактора.

Для общего представления дадим краткое описание ТВС и твэл. Конструкция ТВС реактора ИБР-2М представляет собой сборку из семи тепловыделяющих элементов (твэл), помещенных в шестигранную чехловую трубу. Твэлы (рис. 9.2.5) в ТВС плотно упакованы по треугольной сетке. Общая длина ТВС – 1245 мм. Пучок твэлов заключен в шестигранную трубу диаметром 26,2 мм, длиной 835 мм и толщиной стенки 0,4 мм.

Конструкция твэлов обеспечивает размещение и фиксацию топлива в активной зоне реактора, удержание твердых и газообразных осколков деления в пределах оболочки твэла без распространения по контуру охлаждения активной зоны, надежную теплопередачу к теплоносителю (жидкому натрию) в течение заданного ресурса работы.



**Рис. 9.2.5.** Схема тепловыделяющего элемента ИБР-2М: 1 – наконечник верхний; 2 – оболочка; 3 – пружина; 4 – вставка; 5 – отражатель; 6 – таблетка активной части; 7 – проволока; 8 – втулка; 9 – заглушка.

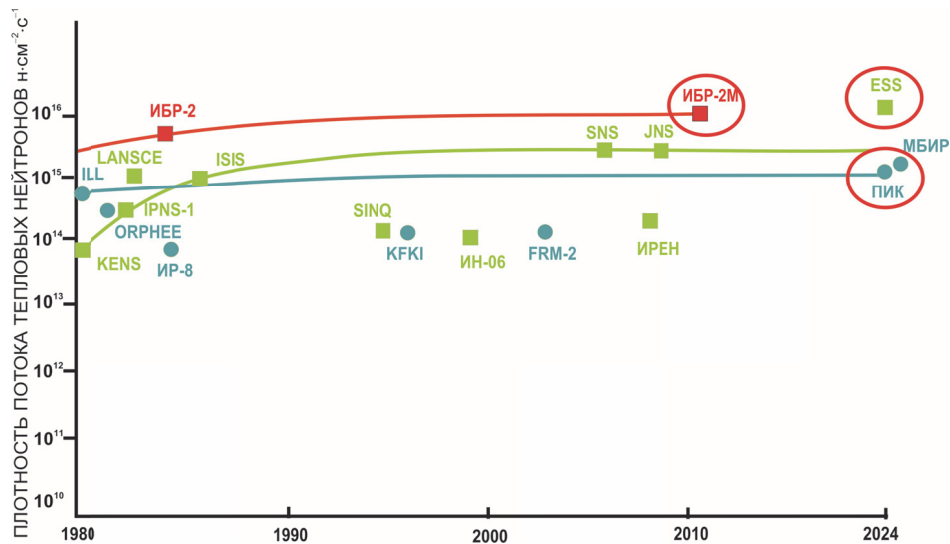
Параметры реактора ИБР-2М приведены в табл. 9.3.1.

### 9.2.2. О пределе нейтронных потоков

Высокопоточные источники нейтронов для исследований на выведенных пучках, как работающие в настоящее время, так и создаваемые, подошли к технологическому пределу в получении плотности потока на поверхности источника. Так, лидеры среди реакторов со стационарным потоком – работающий в Институте Лауэ-Ланжевена реактор HFR и сооружаемый в Петербургском институте ядерной физики им. Б.П. Константинова НИЦ «Курчатовский институт» реактор ПИК, имеют среднюю по времени плотность потока тепловых нейтронов, доступных для исследований на выведенных пучках,  $1.3$  и  $1.2 \cdot 10^{15} \text{ н см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  соответственно, что фактически является технологическим пределом для реакторов такого типа. Обсуждение возможностей повышения плотности потока нейтронов стационарных исследовательских реакторов в книге [Бать и др., 1985] остается актуальным и сегодня. Поэтому здесь мы эту тему развивать не будем.

В настоящее время тенденция в создании источников нейтронов на выведенных пучках – это комбинация ускорителя протонов с мишенью из тяжелого металла. Лидеры среди работающих испарительных источников на базе протонных ускорителей – STS (вторая мишень установки SNS, Ок-Ридж, США) и JSNS (Ибараки, Япония) – после достижения проектных параметров будут давать потоки нейтронов на поверхности внешнего замедлителя в импульсе  $\Phi_p^T \sim (5-6) \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , что также близко к пределу технических возможностей для этого типа источников. В создаваемом в Лунде (Швеция) Европейском испарительном источнике ESS с ускорителем протонов до энергии 2.5 ГэВ и мощностью пучка на мишени 5 МВт пиковый поток будет примерно такой же величины.

Особое место среди источников нейтронов в мире занимает пульсирующий реактор ИБР-2. По импульсному потоку нейтронов он является лидером среди действующих импульсных источников сегодня (см. Табл.9.3.1 и рис. 9.2.6), но и после достижения проектных параметров на установках SNS, JSNS и ESS дубненский реактор останется среди ведущих источников.



**Рис. 9.2.6.** Эволюция высокопоточных источников нейтронов.

Стационарные реакторы (●) и ускорители (■) достигли технологического предела в генерации тепловых нейтронов. Пульсирующие реакторы (■) имеют перспективы развития.

Однако средняя по времени плотность потока с поверхности водяных замедлителей ИБР-2  $(5-8) \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  окажется существенно ниже, чем в лучших испарительных источниках. Кроме того, длительность импульса реактора ИБР-2 около 300 микросекунд является фиксированной, в то время как на ускорительных источниках возможно получение коротких (до 20 микросекунд)

импульсов, что обеспечивает более высокое энергетическое разрешение при спектрометрии нейтронов. Проведенные расчеты по оптимизации конструкции ИБР-2 показывают, что увеличить среднюю мощность реактора и, соответственно, поток нейтронов, в существующей конструкции практически не представляется возможным.

В работе [Аксенов и др., 2017] исследовался вопрос о пределе нейтронных потоков в импульсных источниках на основе деления. Было показано, что уровень плотности потока тепловых нейтронов порядка  $(1-2) \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  с плоского водяного замедлителя оптимальных размеров в импульсных источниках на основе реакции деления – это предел возможностей ядерной технологии первой половины XXI века. Переходом к давно запатентованным устройствам с жидким циркулирующим топливом или устройствам типа уранового циклотла [Бать и др., 1985] можно преодолеть этот барьер и повысить поток примерно на порядок. Однако стоимость сооружения будет, вероятно, не дешевле сооружения ускорителей с такими же возможностями. Заметим, что для неделящейся мишени из вольфрама принцип циклотла фактически реализован в мишенной станции ESS, мишень (вращающийся круг) состоит из 33 вольфрамовых секций.

### 9.2.3. Пульсирующий реактор третьего поколения

Достижение предельного уровня плотности потока нейтронов возможно при использовании нового для исследовательских реакторов ядерного топлива на основе изотопа нептуния-237, предложенного Е.П.Шабалиным [Шабалин и др., 2018] для пульсирующего реактора третьего поколения НЕПТУН (ИБР-3).

Главная особенность изотопа  $^{237}\text{Np}$  в отличие от традиционных ядерных композиций на основе  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$  – это пороговый характер сечения деления, Перечислим основные следствия такого характера деления.

Во-первых, время жизни поколения быстрых нейтронов  $\tau$  (см. раздел 9.1) в зоне с нептунием значительно ниже значения той же величины для зоны с плутонием. Так, в действующем исследовательском реакторе на быстрых нейтронах ИБР-2М  $\tau$  равно 65 нс, в реакторах на промежуточных нейтронах составляет несколько микросекунд, в то время как в нептуниевом реакторе – от 3 до 10 нс, в зависимости от объемной плотности ядерного топлива в активной зоне. Этот фактор позволяет иметь более короткую вспышку быстрых (и, соответственно, тепловых) нейтронов в режиме работы пульсирующего реактора и более высокую мощность при заданной длительности импульса тепловых нейтронов для режима пульсирующего нейтронного бустера – размножающей нейтроны мишени ускорителя с механической модуляцией реактивности (раздел 9.3.4).

Во-вторых, эффективная доля запаздывающих нейтронов  $\beta_{\text{эф}}$  оказывается заметно ниже той же величины для плутония, и для ИБР-2 равна  $2.16 \cdot 10^{-3}$  на один мгновенный нейтрон деления. Низкое значение  $\beta_{\text{эф}}$  определяет малое значение фоновой мощности ( $< 3\%$  против  $7.5\%$  у ИБР-2) в промежутках между

импульсами, а также позволяет работать с более высоким коэффициентом умножения в режиме пульсирующего бустера. Для уранового бустера предельное умножение около 150, для плутониевого – около 450, а для нептуниевого – около 600.

И третье следствие порогового характера деления нептуния – это возможность использования для модулятора реактивности материалов, замедляющих нейтроны. Замедление на ядрах водорода с высоким сечением рассеяния (около 4 барн для спектра деления) и сбросом энергии нейтрона в среднем на 50% на одно рассеяние приводит к быстрому выводу нейтрона из зоны деления нептуния. По сути, водород в нептуниевой зоне «работает» как поглотитель нейтронов. Расчеты показывают, что удаление водородсодержащего вещества (например, гидрида титана) из активной зоны нептуниевого реактора дает изменение реактивности, сравнимое с вводом делящегося вещества. Такого эффекта нельзя достичь перемещением эквивалентного объема отражателя как в реакторе ИБР-2М.

Отмеченные выше особенности деления нептуния позволяют существенно усовершенствовать конструкцию пульсирующего реактора с тем, чтобы достичь предельных значений плотности потока тепловых нейтронов. Главная особенность новой конструкции, разрабатываемой в настоящее время ОИЯИ и НИКИЭТ им. Н.А.Доллежала – это МР, основанный на замене в выделенном месте водородсодержащего вещества на пустоту (рис.9.2.1) и расположенный симметрично между двумя подкритическими частями активной зоны.

МР выполнен в виде вращающегося диска, вдоль периферии которого находится гидрид титана, вещество с высоким содержанием водорода, в форме радиальных секторов. В одном из секторов гидрид титана заменен на пустоту; при вхождении этого сектора в область активной зоны реактора коэффициент размножения нейтронов возрастает вследствие ужесточения спектра нейтронов. Использование такого модулятора обеспечивает более глубокую модуляцию реактивности (большую амплитуду модуляции), чем подвижный отражатель (примерно в два раза). При этом реактивность достигает 5% против 2.3% в реакторе ИБР-2М.

Расположение МР внутри активной зоны освобождает окружающее ее пространство, что позволяет разместить стационарный отражатель и водяные замедлители практически вплотную к зоне. А это, благодаря пороговому характеру деления нептуния, дает увеличение потока нейтронов по сравнению с реактором ИБР-2М примерно в шесть раз: в три раза за счет стационарного отражателя и в два раза за счет замедлителей. Увеличение средней мощности до 10 – 12 МВт дает еще коэффициент 2.5 – 3. В результате средняя плотность потока тепловых нейтронов достигает предельной величины  $2 \cdot 10^{14}$  н·см<sup>-1</sup>·с<sup>-1</sup> [Аксенов и др., 2021].

### § 9.3. Импульсные источники на основе ускорителей

#### 9.3.1. Современное состояние и тенденции развития

Первый импульсный источник на ускорителях был создан в начале 50-х годов в Харуэлле с использованием линейного ускорителя электронов, здесь же в 1959 г. была предложена и реализована идея *нейтронного бустера*: системы ускоритель - размножающая мишень (§9.4). Хотя линейные ускорители электронов относительно просты в изготовлении, в настоящее время они используются мало (из-за низкой эффективности по сравнению с протонными ускорителями) и, в основном, для ядерной физики. Нейтронные бустеры тоже не имеют широкого распространения. Главная проблема состоит в настроении общественности против любых систем, содержащих делящиеся материалы.

Протонные ускорители для импульсных источников нейтронов начали использоваться в начале 70-х годов. В 1973 и 1975 гг. были сконструированы прототипы ZING и ZING-P' в Аргонской национальной лаборатории США, а затем там же с 1981 г. по 2008 г. работал источник IPNS. Аналогичные установки были сделаны в Лос Аламосе в 1977 г., где с 1985 г. работает мощный источник LANSCE, недавно переименованный в LNSC. В 1980 г. вступил в действие источник KENS (работал до 2009 г.) в Национальной лаборатории высоких энергий, КЕК, в Японии. Все эти источники нейтронов первого поколения создавались на ускорителях, предназначенных для ядерной физики.

Первый импульсный протонный источник нейтронов второго поколения, для которого протонный ускоритель был построен специально, - ISIS, начавший работать в 1985 г. в Лаборатории Резерфорда-Эпплтона (Великобритания). В настоящее время ISIS – интенсивный, наиболее оборудованный и приспособленный для использования импульсный источник нейтронов. В 2006 и 2009 г. были приняты в эксплуатацию протонные источники нейтронов в США (SNS) и Японии (J-SNS), соответственно. Это самые мощные и самые интенсивные (в импульсе) источники нейтронов третьего поколения, с которыми может конкурировать только реактор ИБР-2 в Дубне.

Перечисленные источники нейтронов относятся к классу импульсных источников с малой длительностью нейтронного импульса – источники с коротким (< 50 мксек) импульсом (SPS - Short Pulse Source). В последнее время весьма активно обсуждается вопрос о создании источников с длинным (> 300 мксек) импульсом (LPS - Long Pulse Source). Дело в том, что создание протонных накопителей с энергией несколько ГэВ, необходимых для повышения потока нейтронов, весьма дорого. Гораздо дешевле построить мощный линейный протонный ускоритель, но при этом длительность нейтронного импульса увеличивается. Длительность импульса определяет разрешающую способность экспериментальной установки: при стандартном подходе, чем меньше длительность импульса, тем лучше разрешение. Однако развитие техники эксперимента на первом LPS – реакторе ИБР-2 – показывает, что при длинном импульсе с использованием современной электроники и математического обеспечения возможно формирование нейтронных импульсов с необходимой

длительностью, что позволяет получить разрешение на уровне лучших SPS как для упругого, так и неупругого рассеяния. Но при этом поток нейтронов будет на порядок больше. Этот опыт использован при конструировании LPS на протонных ускорителях. Такого типа источник начал работать в 1999 году на линейном ускорителе Московской мезонной фабрики.

Сверхмощный источник нейтронов с длинным импульсом на основе линейного протонного ускорителя сооружается в Лунде (Швеция) в кооперации стран ЕС – Европейский испарительный источник (ESS – European Spallation Source).

В табл. 9.3.1 приведены имеющие международное признание интенсивные импульсные источники нейтронов, используемые для исследований конденсированных сред.

В таблице 9.3.2 приведены восемь источников нейтронов, отнесенные Европейской ассоциацией по рассеянию нейтронов (ENSA) к наиболее перспективным. На этих источниках наиболее развита система пользователей и получены основные научные результаты.

С целью достижения более высоких потоков в начале 1960-х годов были предложены проекты источников на базе протонных ускорителей с непрерывным потоком нейтронов. При этом протонный пучок может быть импульсным, но частота импульсов столь высока, что поток нейтронов, прошедших через замедлитель, является практически непрерывным.

Источник такого типа создан в Швейцарии, где был использован изохронный циклотрон института Пауля-Шерера (Виллиген) с током протонов 1,5 мА при энергии 600 МэВ. Источник нейтронов SINQ проектировался по подобию современных реакторов. SINQ начал работать в конце 1996 г. и имеет поток нейтронов  $10^{14} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$ , что соответствует большинству современных стационарных реакторов (см. табл. 9.3.1).



Таблица 9.3.1. Импульсные источники нейтронов для экспериментов по рассеянию, получившие международное признание\*)

Страна, место	Источник, год создания/ модернизации	Мощность мишени, МВт	Поток $\times 10^{14}$ н/см <sup>2</sup> /с импульсный	Длительность импульсов тепловых нейтронов, мкс; частота, с <sup>-1</sup>	Нейтронные каналы	Холодные замедлители	Станции для рассеяния нейтронов					Полное число
							Дифр.	Магнит.	Рефлект.	Неупр.	Другие	
<b>Источники с коротким импульсом</b>												
<b>Великобритания</b> Chilton	ISIS I, 1985 ISIS II, 2009	0,2	10 45	20-30; 50 20-30; 5	16 13	2 1	10 6	2 4	3 5	7 2	1 2	23 19
<b>США</b> Los Alamos Oak Ridge	MLNSC, 1985 SNS, 2006	0,1 1	7 100	20-30; 20 20-30; 60	16 14	2 1	4 7	2 2	3 2	2 7	2 3	13 21
<b>Япония</b> Ibaraki	JSNS, 2009	1	100	20-30; 25	21	1	7	1	2	3	7	20
<b>Китай</b> Dongguan	CSNS	0,1	50	20-30; 25	20							20
<b>Источники с длинным импульсом</b>												
<b>Россия</b> Дубна	ИБР-2, 1984/2012	2	200	360; 5	14	2	6	1	3	2	2	14
<b>Швеция</b> Lund	ESS 2024 план	5	400	2860; 14								20 после 2025

\*) Число экспериментальных станций меняется по мере развития, поэтому данные последнего столбца играют роль иллюстрации распределения по типам рассеяния.

Таблица 9.3.2. Перспективные источники нейтронов в Европейской стратегии развития (в порядке возраста)

Источник	Начало эксплуатации	Тепловая энергия [МВт]	Средний поток н/см <sup>2</sup> /с	Пиковый поток н/см <sup>2</sup> /с	Дней работы в год	Число станций	Возможное число станций	Число пользователей в год	Эксплуатационные расходы млн.
WWR Будапешт	1959/93	10	2.1 · 10 <sup>14</sup>		140	14	14	100	10
ILL Гренобль	1975/95	58	1.3 · 10 <sup>15</sup>		200	27 + 10 CRG	40	1400	80 + CRG
ИБР-2 Дубна	1984/2012	2 LP	0.8 · 10 <sup>12</sup>	2 · 10 <sup>16</sup>	108	15	17	200	1
ISIS/ ISIS-II Абингтон	1985/2009	0.2 SP	10 <sup>13</sup>	4.5 · 10 <sup>15</sup>	180	34	41	1500	55
SINQ Виллинген	1996	1	1.5 · 10 <sup>14</sup>		200	15	20	600	30
FRM II Мюнхен	2005	20	8 · 10 <sup>14</sup>		240	23 в работе 7 в создании	35	1000	55
ESS Лунд	2024, план	5 LP	10 <sup>14</sup>	4 · 10 <sup>16</sup>	200	20 после 2025	20		103
ПИК Гатчина	2024, план	100	1.2 и 5 · 10 <sup>15*</sup>		200	22 после 2022	40		30

\*) Реактор ПИК имеет центральный канал, в котором по проекту плотность потока нейтронов  $5 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$ , с поверхности водяного замедлителя в каналы –  $1.2 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-2}\text{с}^{-1}$ .

### 9.3.2. Ускорители протонов высоких энергий

В настоящее время наиболее мощные источники нейтронов создаются на основе сильноточных (с током в десятки миллиампер в импульсе и сотни микроампер в среднем) протонных ускорителей с энергией порядка 1.2 – 1.3 ГэВ. Протоны с такой энергией сталкиваются с нуклонами тяжелого ядра мишени и генерируют каскадно-испарительный процесс.

Реакции каскадно-испарительного процесса представляют собой множественное рождение нейтронов и других частиц в различных материалах протяженных мишеней, состоящих из нейтронно-избыточных ядер (Pb, W, Hg, U ...) под действием нуклонов (в первую очередь протонов) высоких энергий (~ 1 ГэВ) – ( $p, xn$ ) или ( $d, xn$ ). Этот процесс происходит в два этапа. Первый этап – внутриядерный каскад. Влетающая в ядро высокоэнергичная частица взаимодействует с отдельными нуклонами ядра, выбивает из ядра быстрые  $n, p, \pi, d, T, \alpha$  и др. частицы, оставляя ядро – остаток в сильно возбужденном состоянии. Доля каскадных частиц в общем балансе несколько процентов, они имеют сильную угловую анизотропию – вылетают преимущественно вперед по направлению исходного нуклона (протона). Спектр каскадных частиц и в первую очередь нейтронов простирается от ~ 10 – 20 МэВ *вплоть до энергии бомбардирующей частицы*. С практической точки зрения это приводит к высокой толщине радиационной защиты нейтронных источников (~ 10 м), значительно большей защиты реакторов.

Второй этап (испарительная (spallation) стадия процесса) – снятие возбуждения ядра-остатка за счет эмиссии  $n, p, d$ , и более сложных частиц и излучения  $\gamma$ -квантов. Спектр испарительных нейтронов близок к спектру деления со средней энергией ~ 2.0 – 2.2 МэВ. Угловое распределение изотропно.

Выбитые из ядра каскадные частицы повторяют аналогичный процесс при более низких энергиях. Заряженные частицы быстро теряют свою энергию на ионизацию. Основной размножающей компонентой оказываются нейтроны.

В делящихся средах такая цепь ядерных реакций включает также и деление ядер вещества мишени, как нуклонами высоких энергий, так и нейтронами спектра испарения. За счет деления выделяется значительно больше энергии в мишенях по сравнению с мишенями из неделящихся ядер, а также появляются запаздывающие нейтроны. Для импульсных источников нейтронов это нежелательные явления, т.к. увеличивается фон между импульсами.

Поскольку для источников нейтронов важен выход нейтронов, который происходит после второго этапа, то этот тип источников получил название испарительных (spallation). В русскоязычной литературе используется также термин «нейтронный источник от расщеплений».

Протоны с начальной энергией 1 ГэВ производят в толстой вольфрамовой мишени ~ 18 нейтронов на один протон, т.е. ~ 1 нейтрон на 56 МэВ протонной энергии. ~ 60 % протонной энергии пучка выделяется в качестве тепла в мишени,

т.е. производство одного нейтрона, покидающего мишень сопровождается  $\sim 1000$  МэВ·0.6/18  $n = 33$  МэВ/ $n$  тепловой энергии (табл. 9.3.3).

Сравнивая данные табл. 9.3.3, видим, что при меньших плотностях тепловыделения, в мишенях сильноточных протонных ускорителей могут быть получены существенно более высокие локальные потоки нейтронов чем в активной зоне ядерного реактора.

**Таблица 9.3.3.** Ядерные реакции для производства нейтронов

Реакция	Пример	Выход нейтронов	Энерговыделение МэВ/н
Деление	$^{235}\text{U}$ , тепловые нейтроны	1н / деление	200
Фотоядерная, тормозное $\gamma$	$^{238}\text{U}$ , 100 МэВ, $e^-$	$5 \cdot 10^{-2}$ н/ $e^-$	2000
Испарение	$^{238}\text{U}$ или W 800 МэВ, p	27 н/p или 18 н/p	55 или 33
Скальвания	Li жидк. 40 МэВ, d	$7 \cdot 10^{-2}$ н/d	3500

Энергия исходного протона должна находиться в интервале от (0.4 – 0.45) ГэВ до (2.5 – 3) ГэВ. При такой кинетической энергии первичной ускоренной частицы ее ионизационный пробег в веществе мишени существенно больше ее пробега относительно ядерного взаимодействия в той же среде.

В этом случае значительная часть начальной энергии пойдет на возбуждение ядер и, следовательно, на образование нейтронов. Для таких веществ, как Pb, Bi, Hg, W, U это условие начинает выполняться лишь при энергиях 400 – 450 МэВ и выше.

При энергии 2.5 – 3 ГэВ, плотность потока тепловых нейтронов на поверхности внешнего замедлителя не увеличивается из-за: снижения плотности взаимодействия первичного протона с веществом и расширения конуса каскадной части; увеличения оттока энергии в электронно-фотонный каскад (прежде всего за счет интенсивного рождения и распада нейтральных пионов –  $\pi^0$ ); возрастания средней энергии вторичного излучения, покидающего мишень ограниченных размеров. Расчеты и опыт показывают, что оптимальная энергия протонного ускорителя примерно равна 1.3 ГэВ.

Типичная схема импульсного источника нейтронов на основе протонного синхротрона показана на рис. 9.3.1. Это источник нейтронов с коротким импульсом (см. раздел 9.3.1). Последний из построенных и наиболее продвинутых источников такого типа (SNS) начал работать в 2009 г. в Оак Ридже (США). Его параметры приведены в табл. 9.3.1.

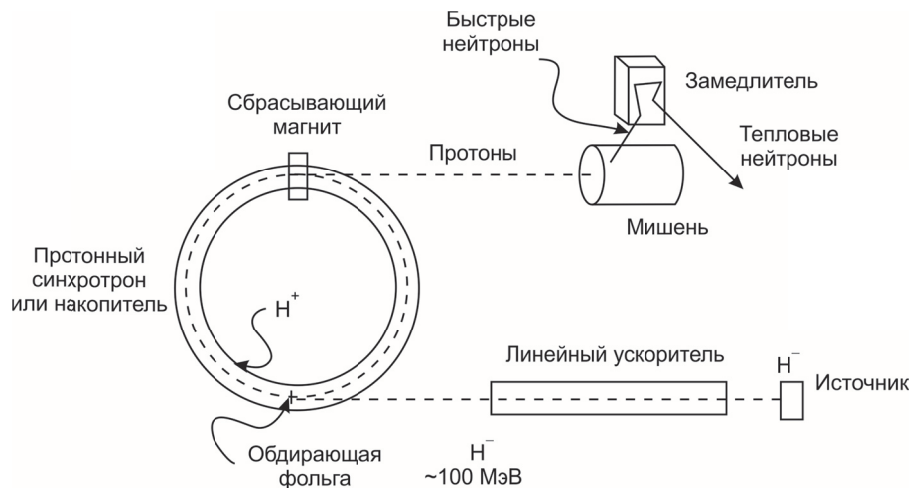


Рис. 9.3.1. Схема источника нейтронов с коротким импульсом на основе ускорителя протонов.

Расчетные характеристики ускорителя ESS: длительность протонного импульса 2.86 мс (длинный импульс); энергия протонов до 2 ГэВ; частота импульсов 14 Гц; мощность пучка 5 МВт. Мишень: цилиндрический сосуд из вольфрама, заполненный охлажденным жидким гелием (4 т). Конструкция оптимизирована под реализацию как можно большего числа нейтронных пучков, что позволит осуществлять в будущем поэтапное развитие ESS в отношении окружающей приборной базы и, таким образом, непрерывно повышать статус и конкурентоспособность источника.

### 9.3.3. Ускорители электронов

Процесс образования нейтронов с помощью быстрых электронов происходит в несколько этапов. Вначале ускоренные электроны тормозятся в кулоновском поле тяжелого ядра конвертора-мишени и при этом испускают тормозные гамма-кванты. Далее происходит фотоядерная реакция ( $\gamma, n$ ). Основным механизмом этой реакции является поглощение гамма-квантов ядром с возбуждением в нем гигантского дипольного резонанса (ГДР) – коллективных колебаний нейтронной и протонной жидкостей. Энергия этого резонанса связана с массовым числом  $A$  ядра-мишени соотношением  $E \approx 80A^{-1/3}$ . Его ширина  $\Gamma$  для тяжелых ядер составляет 5 – 6 МэВ. Энергия этих коллективных колебаний за короткое время  $\tau \sim \hbar/\Gamma \sim 10^{-22}$  с распределяется по одно-нуклонным степеням свободы, т.е. нагревает ядро. Далее происходит испарение нейтронов из такого

нагретого компаунд-ядра. Зависимость выхода нейтронов от энергии падающих электронов для различных мишеней представлена на рис. 9.3.2.

Видно, что резкое увеличение выхода нейтронов происходит, когда энергия электрона (а следовательно, и граничная энергия тормозных квантов) примерно сравнивается с энергией гигантского резонанса фотопоглощения. Далее кривая выхода принимает гораздо более пологий характер, и при энергиях электронов выше примерно 100 МэВ увеличения выхода нейтронов практически не происходит. Существенное увеличение выхода нейтронов для урановой мишени связано с тем, что к процессу испарения нейтронов из компаунд-ядра добавляются еще и нейтроны, испаряющиеся из осколков деления урана под действием гамма-излучения.

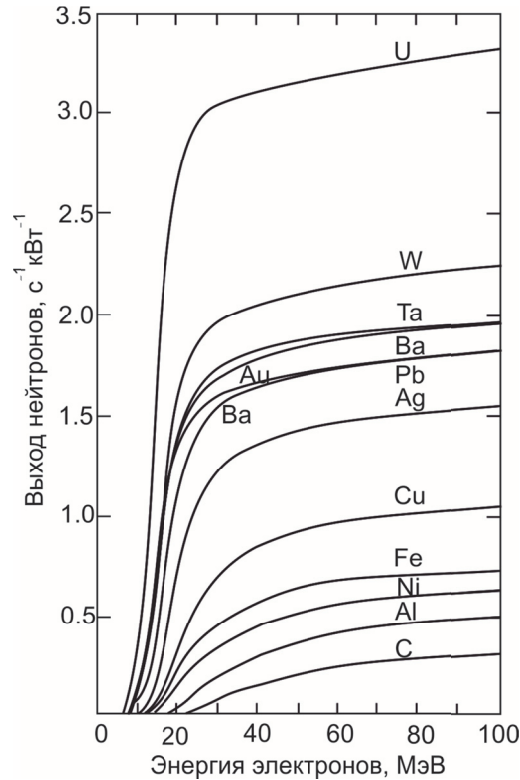


Рис. 9.3.2. Выход нейтронов в фотоядерных реакциях [Бунаков и Краснов, 2014].

Наиболее известные нейтронные источники на базе электронных ускорителей представлены в табл. 9.3.4. К ним относятся:

Установка GELINA (GEel LINear Accelerator – линейный ускоритель в Гееле), г. Геель, Бельгия.

Установка ORELA (Oak Ridge Electron Linear Accelerator – оак-риджский электронный линейный ускоритель), г. Оак-Ридж, США.

Линейный ускоритель им. Гертнера (первого директора установки), г. Трой, США.

Установка ИРЕН (Источник Резонансных Нейтронов), строящаяся в ЛНФ ОИЯИ, г. Дубна, Россия.

Линейный ускоритель KURRI (Kyoto University Research Reactor Institute – Институт исследовательских реакторов Университета Киото), г. Осака, Япония).

Установка PNF (Pohang Neutron Facility – нейтронная установка в Поханге), г. Поханг, Республика Корея.

**Таблица 9.3.4.** Характеристики источников нейтронов на базе электронных ускорителей.

Источник	GELINA	ORELA	Gaertner Linac	ИРЕН	KURRI Linac	PNF
Мишень	U	Ta	Ta	U	Ta	Ta
$E$ , МэВ	110	180	25 – 60	200	35	70 – 100
$I$ , А	110	20	0,4 – 3,0	1,5	2,5 – 6,0	0,3 – 5,0
$\Delta T$ , нс	1	3	15 – 5	250	10 – 100	2 – 1
$\nu$ , Гц	800	1	300 – 500	150	480	30 – 300
$W$ , кВт	7,5	10,8	> 10	10	10	0,2 – 7,0
$F(10^{13}$ н/с)	3,4	2,2	4	2,1	2	2
$L$ , м	8 – 400	9 – 200	10 – 250	1 – 10	10 – 50	10 – 100
Статус	Р	Р	Р	С	Р	П

*Примечание.*  $E$  – энергия электронов,  $I$  – ток пучка,  $\Delta T$  – длительность импульса,  $\nu$  – частота повторения,  $W$  – мощность пучка,  $F$  – средний выход нейтронов,  $L$  – длина пролетной базы, Р – работает, С – строится, П – проектируется [Бунаков и Краснов, 2014].

Все эти источники используют линейные ускорители электронов, так как только в таких ускорителях можно получать в импульсах ток вплоть до сотен ампер. Такие токи необходимы, поскольку в среднем на 20 ускоренных электронов можно получить один фотонейтрон. Типичный выход нейтронов на таких ускорителях  $10^{13}$  –  $10^{14}$  н/с. Для увеличения выхода нейтронов можно использовать принцип пульсирующего нейтронного бустера (§ 9.3.4).

#### 9.3.4. Пульсирующий нейтронный бустер

*Нейтронным бустером* (от английского глагола to boost – усиливать, поддерживать) называют ядерный реактор в подкритическом состоянии на мгновенных нейтронах, импульс мощности в котором развивается за счет размножения нейтронов от внешнего импульсного источника, обычно ускорителя частиц. Первый нейтронный бустер был создан в 1959 г. в Харуэлле (Великобритания), в котором пучок электронов падал на урановую мишень, она же и была подкритической сборкой с коэффициентом размножения, равным 0.9.

Плотность потока фотонейтронов умножалась сборкой в 10 раз. Таким образом, такая система существенно повышала эффективность ускорителя.

В 1964 г. в Дубне эта схема была использована в первом пульсирующем реакторе ИБР. Мишень из вольфрама была установлена в активной зоне, под воздействием электронов из микротрона с током 80 мА, она производила  $10^{10}$  н/импульс с частотой 50 Гц. Реактор умножал это количество на 200. Средняя мощность была ничтожно малой - 1.2 кВт. Главное достижение состояло в уменьшении длительности импульса нейтронов с 40 мкс от реактора до 4 мкс от *пульсирующего бустера* при той же и даже большей плотности потока нейтронов [Шабалин, 1976]. Следующий пульсирующий нейтронный бустер ИБР-30 на базе линейного ускорителя электронов был создан в 1969 г. и проработал до 2001 г. Реактор ИБР-2 планировался тоже как пульсирующий бустер с линейным индукционным ускорителем электронов. Однако реализовать амбициозный проект ускорителя не удалось и было решено оставить только реакторный режим. В то же время потенциальные преимущества пульсирующего нейтронного бустера – высокий поток нейтронов и два режима работы с длинным и коротким импульсом, остаются мотивацией для рассмотрения подобных проектов новых источников нейтронов.

Установленная средняя мощность в проектируемом реакторе НЕПТУН (ИБР-3) близка к предельной для пульсирующего реактора и накладывает повышенные требования к соблюдению мер безопасности. Поэтому весьма привлекательной является схема пульсирующего бустера, когда реактор, исполняющий роль размножающей мишени, находится в подкритическом состоянии. В случае использования активной зоны на основе нептуния как нейтрон-производящей мишени протонного ускорителя (режим пульсирующего бустера) влияние флуктуаций реактивности на энергию импульсов мощность в сотни раз слабее. Ведущую роль в генерации нейтронных вспышек играет тогда ток протонов ускорителя, а обратная связь «температура топливного сердечника – ток протонов» отсутствует по естественным причинам.

Еще одно преимущество бустера – возможность уменьшения длительности импульса, для тепловых нейтронов на порядок: с 300 – 400 мкс до 20 – 30 мкс. А поскольку умножение в нептуниевом пульсирующем реакторе может достигать нескольких сотен, то требования к ускорителю не такие высокие, как в случае источников без размножения.

В то же время в выборе ускорителя тоже есть вопросы. Традиционно для бустеров используют ускорители электронов, однако для большой мощности в нашем случае можно ожидать трудностей при снятии выделяемой энергии в случае с электронами (табл. 9.3.1). В этом смысле больше подходит ускоритель протонов. Условию получения предельной плотности потока нейтронов, указанной в разделе 9.2.2. удовлетворяет ускоритель с энергией протонов около 1 ГэВ и током в импульсе около 50 мА, длительность импульса протонов 20 и 160 мкс, с повторяемостью 30 и 10 Гц, соответственно. Средняя мощность протонного пучка может быть вполне умеренная: меньше 100 кВт. Однако и в этом случае все



не так просто. Дело в том, что протонные ускорители не обладают стабильностью пучка с течением времени: случайным образом возникают сбросы тока протонов длительностью от секунд до нескольких часов. А в таких случаях и у реакторной мишени будет сброс мощности. Таким образом, пульсирующий нейтронный бустер может рассматриваться в качестве перспективы развития, но требуется новый уровень ускорительной техники либо разработка активной зоны реактора с возможностью изменения реактивности в моменты сброса ускорителя.

Такая же проблема стоит перед создателями так называемых *электроядерных установок* или подкритических систем, управляемых ускорителем (Accelerator Driven Systems, ADS), которые разрабатываются с 1950-х годов для переработки отработанного ядерного топлива и производства энергии. Экспериментально идея была подтверждена на ускорителе в ОИЯИ еще в начале 1950-х годов, однако проблема реализации принципа состоит именно в нестабильностях протонных ускорителей. Возможно, что проблема ADS будет решена с помощью индукционных ускорителей электронов. Однако для нейтронного бустера, как мощного источника нейтронов, по рассмотренным выше причинам больше подходит ускоритель протонов. Поскольку проблема ADS связана с перспективными промышленными применениями, то нет сомнений в том, что она будет решена.

Среди альтернативных вариантов принципиального повышения потока нейтронов в выведенных пучках отметим схему инерциального синтеза, инициируемого импульсными лазерами, которая может дать, в принципе, плотность потока нейтронов на несколько порядков выше достижимой сегодня. Реализация этой схемы сдерживается проблемой радиационной стойкости материалов. Эта же проблема сдерживает создание промышленного термоядерного реактора. При интересе к этой проблеме в наши дни, возможно она будет решена в течение ближайших десятилетий, что откроет путь к сверхмощному источнику нейтронов и для исследований на выведенных пучках.

### 9.3.5. Компактные ускорительные источники нейтронов

Постоянно обсуждаемая тема в нейтронном сообществе – необходимость иметь компактные источники нейтронов, которые, аналогично рентгеновским установкам, могли бы быть размещены в университетских лабораториях. Самый простой источник такого типа – это *нейтронный генератор* на ускорителях дейтронов прямого действия (ускорение в постоянном электрическом поле). Ускоряющее напряжение составляет 100 – 400 кВ. Мишень представляет собой водородсодержащее соединение, например, титан, скандий, цирконий. Эти металлы поглощают до двух атомов водорода ( $^1\text{H}$ ,  $^2\text{H}$ ,  $^3\text{H}$ ) на один атом металла. В реакции  $d + d \rightarrow n + ^3\text{He}$  вылетает нейтрон с энергией примерно 2.5 МэВ, угловое распределение нейтронов изотропно. В реакции  $d + t \rightarrow n + ^3\text{He}$  вылетает нейтрон с энергией примерно 14.2 МэВ, угловое распределение слегка вытянуто вперед. Нейтронные генераторы бывают с постоянным потоком и импульсные.

Современные генераторы дают до  $10^{12}$  н/импульс с длительностью импульса до 10 нс. Основным элементом нейтронного генератора – нейтронная трубка, состоящая из ускоряющей системы и мишени. Характерные размеры ускоряющей трубки генераторов такой интенсивности:  $90 \times 110 \times 140$  см. Ресурс трубки ограничен. Обычные промышленные трубки выдерживают порядка 1000 включений, после чего они подлежат замене.

Нейтронные генераторы являются компактными приборами для активационного анализа, нейтронного каротажа, радиационной медицины, неразрушающего контроля инженерных изделий, исследования критических характеристик реакторов на быстрых нейтронах, моделирования параметров термоядерных установок, моделирования воздействия нейтронных источников на различные объекты, для обучения студентов. В последнее время получили распространение нейтронные генераторы, в ускорительной трубке которых встроен детектор альфа-частиц. Регистрация альфа-частицы позволяет точно определить время рождения нейтрона (меченые нейтроны).

В экспериментах по рассеянию нейтронные генераторы используются редко (иногда для дифракции и малоуглового рассеяния), поэтому в настоящее время во многих лабораториях активно ведутся разработки так называемых *компактных ускорительных источников нейтронов* (КУИН, в английской аббревиатуре CANS – Compact Accelerator-driven Neutron Sources). В таком источнике используется реакция скалывания (табл. 9.3.3), для которой характерен «прожекторный» эффект – нейтроны вылетают преимущественно в направлении ускоряемых частиц (эффект Оппенгеймера – Филлипса). Энергия ускоряемых протонов или дейтронов может быть в широком интервале до 100 МэВ, ток в импульсе до 100 мА, длительность импульсов от 50 мкс до 2 мс, частота повторения импульсов от 10 до 300 Гц. В качестве мишени используется пластина из легких металлов, например, Li и Be, охлаждаемая водой или жидким металлом. Максимальная мощность мишени 100 кВт. Ускоритель может быть с постоянным током и импульсным, хотя по современным представлениям более эффективными являются импульсные ускорители для реализации в экспериментах метода времени пролета. Создание сильноточных ускорителей протонов пока представляет собой определенную проблему, но над ее решением идет интенсивная работа.

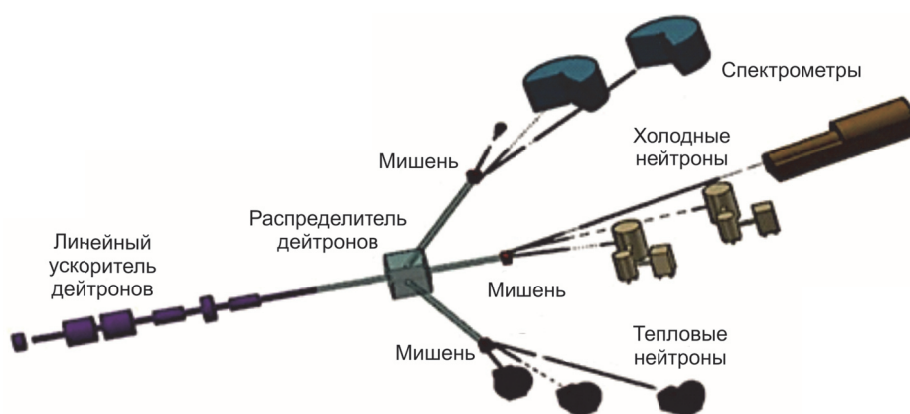
Термин «компактный» относится в первую очередь к мишенному блоку, состоящему из мишени для ускорителя и замедлителя. Размер мишенного блока может быть размером в несколько литров. Для сравнения, объем активной зоны реактора, включая отражатель, или мишенная станция источника на протонном ускорителе могут достигать 1000 литров. Протонный ускоритель тоже может быть компактным: 10 – 30 метров. Для сравнения, линейный ускоритель ESS имеет длину 600 метров. Такой источник должен быть значительно дешевле (больше, чем на два порядка относительно к реакторам и ускорителям высоких энергий), иметь небольшие размеры. Принципиальные требования: отсутствие ядерных делящихся материалов и простые технологии эксплуатации. При этих

условиях такие источники могут размещаться в университетских и подобных лабораториях.

КУИН, благодаря «прожекторному» эффекту, будет иметь плотность потока в заданном направлении эквивалентную плотности потока от реактора средней мощности. Отличие состоит в том, что поток нейтронов будет направлен на ограниченное количество спектрометров в заданном направлении. В традиционной парадигме главным параметром источника нейтронов считается плотность потока нейтронов. Однако при уменьшении размеров образцов, что особенно важно для биологических объектов, более показательным параметром становится яркость. Максимальная яркость

$$B = \frac{\text{нейтроны}}{\text{с} \cdot \text{мм}^2 \cdot \text{мрад}^2 \cdot 0.1\%(\Delta E/E)}$$

достигается для выделенных нейтронных пучков. В этом и состоит новая концепция компактного источника, главная идея которой заключается в том, что подстраивается источник под конкретный небольшой набор спектрометров. В качестве примера на рис. 9.3.3 показана схема распределения нейтронных пучков на источнике высокой яркости (High Brilliance Source, HBS), разрабатываемом в Юлихе (ФРГ) [Rucker et al., 2016].



**Рис. 9.3.3.** Схематическое изображение распределения пучков нейтронов на компактном источнике HBS (Юлих) [Rucker et al., 2016].

Параметры ускорителя (частота и длительность импульсов ускоряемых частиц) и параметры замедлителя (геометрия, вещество и температура) подстраиваются под определенную методику и даже под конкретный эксперимент. На этом пути достигается максимальная оптимизация системы источник – спектрометр, а соответственно и максимальная оптимизация затрат на исследования. Можно сказать, что философия КУИН состоит в том, чтобы производить нейтроны для

конкретного круга задач и стремиться к максимальной эффективности источника (см. § 9.4).

В настоящее время в мире уже действуют и создаются несколько компактных источников в довольно широком интервале параметров. Так, Исследовательский центр в Юлихе одновременно с КУИН HBS на базе ускорителя протонов с энергией 70 МэВ и током в импульсе 100 мА, который на мишени из Та при мощности 100 кВт будет давать в импульсе  $10^{15}$  н/с, планирует построить КУИН NOVA-ERA на базе промышленного ускорителя протонов с энергией 10 МэВ, током в импульсе 1 мА, мишенью из Ве и средней мощностью 1 кВт. Такой источник будет давать на два порядка меньше нейтронов, чем HBS, но стоить будет в 10 -40 раз меньше (10 миллионов Евро).

В России для пользователей работает КУИН ИРЕН в ОИЯИ (Дубна) на базе ускорителя электронов с энергией 30 МэВ, током в импульсе 3 А на мишени из вольфрама. При средней мощности 0.4 кВт поток нейтронов  $10^{11}$  с<sup>-1</sup> не достаточен для экспериментов по рассеянию. Для таких экспериментов в Санкт-Петербургском университете в кооперации с ПИЯФ и ИТЭФ НИЦ КИ разрабатывается КУИН ДАРИА на базе ускорителя протонов с энергией 13 МэВ, током в импульсе до 100 мА и мишенью из бериллия. Проектируемая мощность – 40 кВт и поток нейтронов  $10^{14}$  с<sup>-1</sup>, что обеспечит полноценную научную программу.

#### § 9.4. Сравнение источников

При сравнении различных типов источников необходимо учитывать много факторов. У каждого типа источников есть свои преимущества и недостатки и только в сравнении результатов экспериментов можно сделать заключение в преимуществах того или иного типа. Более того, даже сравнивая скорость получения и точность, например, дифракционных данных для одного и того же образца при стандартном уточнении структуры поликристалла, можно делать лишь качественные выводы, так как из-за разного наблюдаемого интервала межплоскостных расстояний  $d_{hkl}$  и разного поведения функции разрешения  $R(d)$  ситуация для позиционных и тепловых параметров атомов оказывается различной. Практика показывает, что на времяпролетных и двухосных дифрактометрах одного класса, т.е. с примерно одинаковыми разрешением и полным потоком на образце, качество структурной информации оказывается также примерно одинаковым, тогда как некоторые детали могут различаться очень сильно.

Поэтому можно только утверждать, что для задач, требующих одного измерения при заданной длине волны, например, измерения определенного брэгговского или фононного пика, спектрометры с кристаллическими монохроматорами на источнике с стационарным потоком сегодня наиболее эффективны. В остальных случаях, когда можно проводить измерения в широкой области длин волн нейтронов, а также когда требуется фиксированная геометрия

рассеяния, импульсный источник и метод времени пролета является более предпочтительным.

Для проведения экспериментов по рассеянию основной характеристикой источника является средний поток нейтронов, который определяет не только скорость проведения экспериментов, но и возможности увеличения точности измерений, изучения объектов малых размеров, изучения сложных объектов и объектов с малым сечением рассеяния, проведения экспериментов с анализом поляризации нейтронов до и после рассеяния. Как видно из сравнения табл.9.2.1 и табл.9.3.1 по этой характеристике существующие импульсные источники нейтронов уступают стационарным реакторам.

Однако, как показывает анализ условий проведения экспериментов по рассеянию на источниках со стационарным потоком и на импульсных источниках, для идеально сконструированных приборов, требующих монохроматизации пучка, средний по времени поток на импульсном источнике эквивалентен пиковому потоку [Mezei F., 1994]. Это означает, что в таких случаях даже на существующих импульсных источниках условия для проведения экспериментов могут быть лучше, чем на стационарном реакторе.

Для импульсных источников важными характеристиками являются частота повторения нейтронных импульсов и их длительность. Чем больше частота повторения, тем больше средний поток, но, с другой стороны, частота повторения не должна приводить к “перекрытию” нейтронов от соседних импульсов при их анализе по времени пролета. Оптимальная величина частоты импульсов зависит от длительности импульса и типа эксперимента. Чем больше длительность импульса и чем дальше прибор стоит от источника, тем меньше должна быть частота повторения. На источниках с высокой частотой повторения иногда приходится искусственно ее уменьшать с помощью специальных прерывателей. Так, на дифрактометре высокого разрешения HRPD на источнике ISIS на пролетной базе 100 м при частоте 50 Гц для работы в диапазоне от 0.5 до 2.5 Å приходится пропускать четыре импульса источника из пяти.

Импульс нейтронов на всех источниках формируется замедлителями и его форма является сверткой импульса быстрых нейтронов, образующихся в активной зоне, и функции отклика замедлителя. Для испарительных источников длительность импульса быстрых нейтронов настолько мала (~ 0.1 мкс), что не влияет на конечный результат, все определяется замедлителем, который может быть оптимизирован либо по выходу нейтронов, либо по длительности импульса. При получении тепловых нейтронов, которые используются в физике конденсированных сред, длительность импульса получается  $\Delta t_0 > 10$  мкс.

В пульсирующем реакторе длительность импульса быстрых нейтронов велика (~200 мкс), при замедлении она еще увеличивается, то есть пульсирующий реактор является источником с длинным импульсом.

В экспериментах по рассеянию нейтронов измеряют дважды дифференциальное сечение рассеяния в элемент телесного угла  $d\Omega$ :

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} = \frac{\bar{k}_1}{\bar{k}_0} S(\bar{q}, \omega), \quad (9.4.1)$$

где  $\bar{k}_0$ ,  $\bar{k}_1$  – волновые вектора падающего и рассеянного нейтрона,  $\bar{q} = \bar{k}_0 - \bar{k}_1$  – вектор рассеяния,

$$h\omega = \frac{h^2}{2m} (k_0^2 - k_1^2) -$$

– переданная энергия. Волновой вектор связан с длиной волны нейтрона соотношением  $|\bar{k}| = k = 2\pi/\lambda$ . На импульсных источниках нейтронов измеряется время пролета нейтрона  $t$  суммы расстояний от источника до образца  $L_1$  и от образца до детектора  $L_2$ . Для перехода от  $t$  к длине волны используется соотношение:

$$\lambda = \frac{h}{mv} \approx \frac{t}{4(L_1 + L_2)}, \quad (9.4.2)$$

где  $v$  – скорость нейтрона,  $\lambda$  измеряется в Å,  $t$  – в мс,  $L$  – в м. Вся информация о свойствах образца содержится в функции рассеяния  $S(\bar{q}, \omega)$ .

В экспериментах по упругому рассеянию нейтронов точность измерений (разрешение прибора) зависит от точности измерения переданного импульса, которая в свою очередь зависит от длительности импульса источника  $\Delta t_0$  и от геометрических неопределенностей процесса рассеяния. В экспериментах по малоугловому рассеянию и рефлектометрии длительность нейтронного импульса не является определяющей из-за большого геометрического вклада, тогда как в дифракционных экспериментах оба вклада примерно одинаковы. Для улучшения разрешения на источниках с длинным импульсом приходится использовать специальные приемы и, как показывает сравнение результатов измерений одних и тех же образцов на реакторе ИБР-2 и на источнике ISIS, с их помощью удается получить примерно одинаковое разрешение, в том числе и для экспериментов по неупругому рассеянию нейтронов. При этом происходит неизбежная потеря интенсивности, но более высокий средний поток нейтронов от ИБР-2 обеспечивает примерно одинаковую скорость набора информации.

Итак, чем более интенсивный источник, тем больше возможностей его применения в экспериментах по рассеянию.

Все предыдущее обсуждение относится к парадигме создания сверхмощного источника нейтронов, с помощью которого возможно решение широкого круга задач. Поскольку уже в конце 1980-х годов было видно, что затраты на увеличение интенсивности источников не соответствуют получаемым результатам, то много усилий было направлено на повышение эффективности способов доставки нейтронов до образца и регистрации рассеянных нейтронов. В результате был достигнут десятикратный и выше выигрыш в светосиле

экспериментов. Этот процесс продолжается, однако, понятно, что и он имеет предел.

Качественно новый шаг был сделан в проекте ESS, в котором заложена идея повышения эффективности комплекса в целом за счет проектирования источника для заданного круга научных задач и, соответственно, круга экспериментальных станций. Длинный, около 3 мс, импульс протонного пучка и низкая, 14 Гц, частота повторения импульсов создают оптимальные условия для получения выведенных нейтронов с большими длинами волн высокой интенсивности. В результате планируется значительное увеличение светосилы в экспериментах с холодными нейтронами, для которых не требуется высокого разрешения. Эта возможность позволит перейти на новый уровень в исследованиях мягкого вещества и биологических объектов. Однако для экспериментов, требующих высокого разрешения, потребуется создание системы прерывателей нейтронного пучка, что приведет к потере интенсивности. Другой путь глобального решения этой проблемы - строительство новых мишеней для получения коротких импульсов, что ведет к еще большему удорожанию комплекса источника нейтронов.

С учетом того, что стоимость экспериментальных станций на современных высокопоточных источниках не превышает, как правило, 30 % стоимости самого источника, очевидно, что удешевление и повышение эффективности нейтронных исследований может быть достигнуто на пути удешевления ускорителя, мишени и замедлителей. Проще всего эта задача решается с помощью компактных ускорительных источников нейтронов. Можно указать три направления максимальной оптимизации экспериментов по рассеянию нейтронов, реализуемых на компактном источнике. Первое, длительность импульса ускорителя должна быть как можно ближе к длительности импульса нейтронов после замедлителя. Второе, создание индивидуального для каждого эксперимента замедлителя с наибольшей яркостью. Третье, оптимизация способов проводки нейтронного пучка до образца в соответствии с требованиями конкретной экспериментальной станции.

Итак, согласно современной стратегии в области создания источников нейтронов, необходимо иметь один или два на континенте источника нейтронов с предельно высокой плотностью потока нейтронов и как можно больше компактных источников в университетах и отдельных научных центрах. Эта стратегия совпадает со стратегией второй половины прошлого столетия, только теперь на смену ядерным реакторам малой и средней мощности должны прийти компактные источники нейтронов от ускорителей частиц низкой энергии.

**Рекомендованная литература к главе 9**

Аксенов В.Л. (2009) *Пульсирующие ядерные реакторы в нейтронной физике*, УФН, **179**, 434.

Аксенов В.Л., Рязнин М.В., Шабалин Е.П. (2021) *Исследовательские реакторы ОИЯИ: взгляд в будущее*, Физика ЭЧАЯ.

Бать Г.А., Коченов А.С., Кабанов Л.П. (1985) *Исследовательские ядерные реакторы*, М.: Энергоатомиздат.

Бунаков В.Е., Краснов Л.В. (2014), *Нейтронная физика*, СПб: СПбГУ.

Шабалин Е.П. (1976) *Импульсные реакторы на быстрых нейтронах*, М: Атомиздат.



## ГЛАВА 10. ЗАМЕДЛИТЕЛИ

### § 10.1. Замедление быстрых нейтронов

На любых типах исследовательских источников нейтроны образуются в результате разнообразных ядерных реакций (деления, испарения и др.) и имеют довольно большую характерную энергию  $E \sim 10^6$  эВ (быстрые нейтроны). Например, нейтроны, образующиеся в результате реакции деления актиноидов, имеют широкое энергетическое распределение с максимумом в районе 0.6 МэВ (рис. 10.1.1). Наоборот, характерная энергия нейтронов, используемых в исследованиях конденсированных сред мала и составляет  $E \sim 10^{-2}$  эВ. Таким образом, для того, чтобы проводить нейтронографические эксперименты, кинетическую энергию нейтронов, получаемых на источниках, необходимо уменьшить в  $\sim 10^8$  раз. Соответствующий физический процесс называют «замедлением» (Глава 1, § 1.4), а устройства, которые его осуществляют – «замедлителями». Простым и эффективным замедлителем является вода, замедление нейтронов в которой в основном происходит за счет их соударений с ядрами водорода, сопровождающихся быстрой потерей энергии.

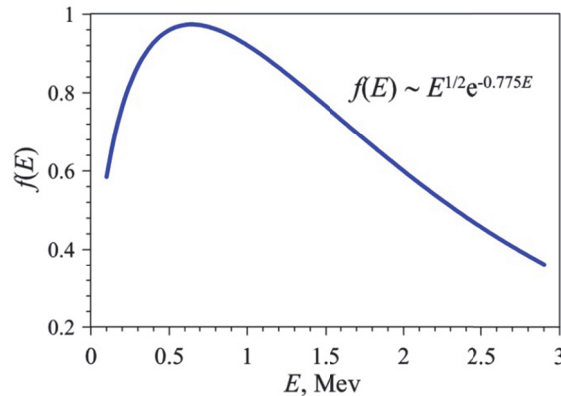


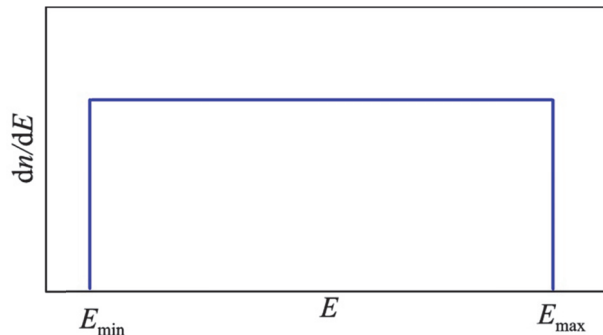
Рис. 10.1.1. Модельное представление распределения мгновенных нейтронов деления ядра в зависимости от их энергии.

Упрощенное описание процесса замедления возможно с использованием законов классической механики столкновения тел с передачей кинетической энергии. Величина энергии, передаваемой при соударении нейтрона с ядром вещества замедлителя, зависит от соотношения их масс и угла разлета после столкновения [Ландау, Лифшиц, 1988]. В простейшем случае лобового удара нейтрона с покоящимся ядром:  $v_1 = |1 - A|/(1 + A) \cdot v$ ,  $v_2 = 2/(1 + A) \cdot v$ , где  $v_1$  и  $v_2$  – скорости нейтрона и ядра после соударения,  $A$  – массовое число ядра,  $v$  – скорость нейтрона до столкновения. Видно, что если  $A = 1$  (ядро водорода), то после соударения нейтрон просто останавливается. В общем случае произвольного угла

рассеяния (от 0 до 180°) и в предположении изотропности сечения рассеяния любая потеря энергии в интервале ( $E_{\min} - E_{\max}$ ) равновероятна (рис. 10.1.2). На этом рисунке  $E_{\max} = E_1$  – энергия налетающего на ядро нейтрона,  $E_{\min} = E_1 \cdot [(A-1)/(A+1)]^2$  – минимально возможная энергия нейтрона после столкновения,

$$dn/dE = (n/E_1) \cdot (A+1)^2 / (4M) \quad (10.1.1)$$

есть число нейтронов с энергией  $E$ , приходящееся на интервал энергий  $dE$ . Средняя энергия нейтрона после одного соударения есть  $\langle E \rangle = (E_{\max} - E_{\min})/2 = E_1(A^2 + 1)/(A + 1)^2$  и, например, в водороде энергия нейтрона в среднем будет уменьшаться в два раза при каждом столкновении.



**Рис. 10.1.2.** Вероятность потери энергии нейтроном при одном столкновении с ядром материала замедлителя.

Полный расчет процесса замедления оказывается довольно сложным, поскольку необходимо учесть возможность ядерных реакций и поглощение нейтронов при взаимодействии с веществом замедлителя, наличие ядер разной массы и химическую связь между ними (например, при замедлении в воде), геометрическую конфигурацию замедлителя и утечку нейтронов за его пределы (подробнее см. § 1.4). Ядерные реакции (реакции  $n - \gamma$ ,  $n - n$  и др.) возможны при больших энергиях замедляющихся нейтронов, в основном, при  $E > 100$  кэВ. При меньших энергиях начинается процесс *термализации* нейтронов, т.е. постепенное выравнивание средних кинетических энергий вещества замедлителя и замедляющихся нейтронов вследствие их последовательных взаимодействий (соударений). При полной термализации распределение нейтронов по энергии становится максвелловским [Ландау, Лифшиц, 2002]:

$$n(E)dE = 2 \frac{n}{\sqrt{\pi}} \cdot (E/E_0)^{1/2} / E_0 \cdot \exp(-E/E_0) dE, \quad (10.1.2)$$

здесь  $n$  – плотность нейтронов, т.е. количество нейтронов в 1 см<sup>3</sup> замедлителя,  $E_0$  – параметр распределения, связанный с температурой замедлителя соотношением  $E_0 = k_B T$ , где  $k_B$  – постоянная Больцмана. Распределение  $n(E)$  задает число нейтронов, находящихся в единице объема и имеющих энергию  $E$  в

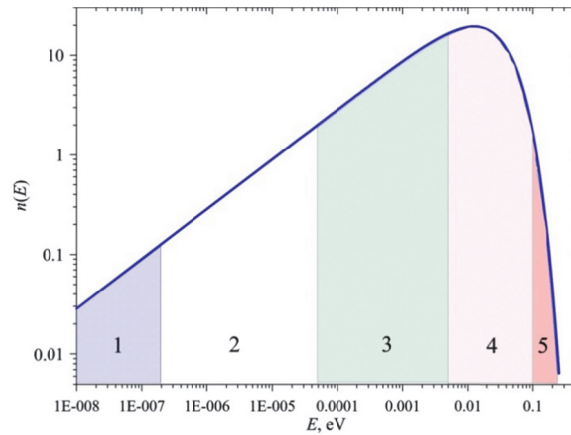
интервале энергий  $dE$ . Размерность распределения  $n(E)$  есть  $[n(E)] = [n]/[E]$  и обычно для него используются единицы  $\text{н}/\text{см}^3/\text{эВ}$ . Константа  $2/\sqrt{\pi}$  в (10.1.2) определена из условия нормировки, а именно:  $\int_0^\infty n(E) dE = n$ .

**Таблица 10.1.1.** Условная классификация реакторного спектра нейтронов по энергии. Указаны диапазон энергий, характерные температура (длина волны) и скорость нейтронов (см. также табл. В1 во Введении).

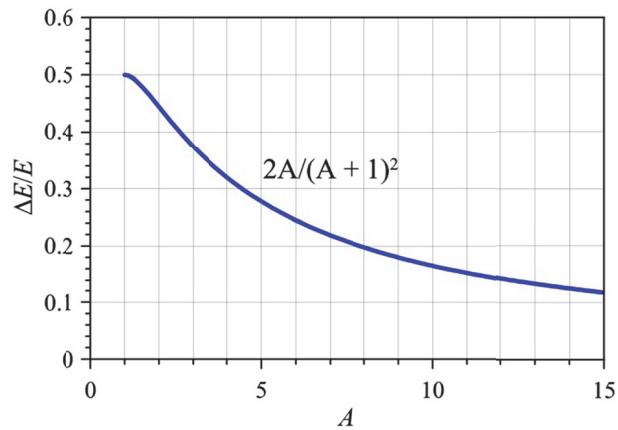
Нейтроны	Диапазон энергий, эВ	Характерная температура, К	Характерная скорость, м/с
Ультрахолодные	$<3 \cdot 10^{-7}$	$<3.5 \cdot 10^{-3}$ ( $>520 \text{ \AA}$ )	$<7.6$
Очень холодные	$3 \cdot 10^{-7} - 10^{-4}$	0.01 (300 $\text{ \AA}$ )	15
Холодные	$10^{-4} - 10^{-2}$	$<60$ ( $>4 \text{ \AA}$ )	$<1000$
Тепловые	$10^{-2} - 0.1$	300 (1.8 $\text{ \AA}$ )	2200
Надтепловые	0.1 – 1	$5 \cdot 10^3$ (0.4 $\text{ \AA}$ )	$10^4$
Резонансные	$1 - 10^4$	$10^6$ (0.03 $\text{ \AA}$ )	$1.5 \cdot 10^5$
Промежуточные	$10^4 - 10^5$	$5 \cdot 10^8$ (0.0014 $\text{ \AA}$ )	$3 \cdot 10^6$
Быстрые	$>10^5$	$>10^9$	$>5 \cdot 10^6$

В спектре нейтронов в стационарном ядерном реакторе можно выделить несколько энергетических диапазонов, различия между которыми определяются (довольно условно) характерной температурой нейтронов в заданном диапазоне, основным типом их взаимодействия с веществом или направлением их использования. В Таблице 10.1.1, которая в основном повторяет таблицу В1 во Введении, эти диапазоны указаны вместе с характерными температурами и скоростями. Конденсированные среды изучаются с помощью нейтронов с энергиями  $E < 1$  эВ. Максвелловское распределение с выделенными пятью диапазонами малых энергий показано на рис. 10.1.3.

Эффективность замедляющих свойств вещества замедлителя оценивается по нескольким параметрам, основными из которых являются средняя потеря энергии при одном соударении и величина поглощения нейтронов. Из расчетов следует, что средняя потеря энергии нейтронов будет наибольшей в водороде (рис. 10.1.4.), но поглощение в нем довольно велико, поэтому часто предпочтение отдается тяжелой воде ( $\text{D}_2\text{O}$ ). Кроме водородных или дейтериевых сред в качестве замедлителей иногда используются бериллий (или окись бериллия) и графит. В этих веществах время замедления, т.е. время достижения тепловой энергии, составляет около  $10^{-4}$  с.



**Рис. 10.1.3.** Распределение Максвелла для плотности нейтронов, находящихся в тепловом равновесии с веществом замедлителя при температуре  $T = 293$  К (дважды логарифмический масштаб). Цифрами выделены области энергий нейтронов: ультрахолодных, очень холодных, холодных, тепловых и надтепловых (от 1 до 5).



**Рис. 10.1.4.** Средняя относительная потеря энергии нейтроном при одном соударении как функция массового числа ядра.

## § 10.2. Поток нейтронов от источника

Плотность нейтронов в замедлителе необходимо знать для расчета характеристик ядерного реактора, например, его реактивности, критических размеров и др. Для обсуждения свойств реактора как источника нейтронов для исследований на выведенных пучках важен поток нейтронов из замедлителя. Полный интегральный поток нейтронов определяется как их плотность, умноженная на скорость (§ 1.4, формула (1.4.5)). Для расчета потока сначала необходимо преобразовать распределение плотности по энергии,  $n(E)$ , в

распределение по скорости,  $\Phi(v)$ . Для этого следует воспользоваться известным соотношением между распределениями, а именно,  $n(E)dE = \Phi(v)dv$  и формулой  $E = mv^2/2$ . В результате из (10.1.2) получаем:

$$\Phi(v)dv = 2\Phi_0 \cdot v^3/v_0^4 \cdot \exp\left[-(v/v_0)^2\right]dv, \quad (10.2.1)$$

где  $v_0 = (2E_0/m)^{1/2}$  – параметр распределения, связанный с температурой замедлителя,  $\Phi_0 = (4n/\sqrt{\pi}) \cdot v_0$  – полный поток нейтронов, т.е.  $\Phi_0 = \int_0^\infty \Phi(v) dv$ .

Полный поток нейтронов,  $\Phi_0$ , – это количество нейтронов с любой скоростью, пересекающих единичную площадь в единицу времени во всех направлениях (скалярный поток в  $4\pi$  стерадиан). Соответственно, поток нейтронов со скоростью  $v$ , т.е.  $\Phi(v)dv$ , есть количество нейтронов со скоростью  $v$  в интервале скоростей  $dv$ , пересекающих единичную площадь в единицу времени во всех направлениях.

Из (10.2.1) и соотношения между распределениями по скорости и по длине волны  $\Phi(v)dv = \Phi(\lambda)d\lambda$  получаем для  $\Phi(\lambda)$ , как функции длины волны нейтрона:

$$\Phi(\lambda)d\lambda = 2\Phi_0 \left(\lambda_0^4/\lambda^5\right) \cdot \exp\left(-\lambda_0^2/\lambda^2\right)d\lambda, \quad (10.2.2)$$

где  $\lambda_0 = 3956.04/v_0$  – параметр распределения. Размерность полного потока  $[\Phi_0] = [n] \cdot [v] = \text{н} \cdot \text{см}^{-3} \cdot (\text{см}/\text{с}) = \text{н}/\text{см}^2/\text{с}$ . Величину  $\Phi(\lambda)$  принято называть *плотность потока*, ее размерность  $[\Phi(\lambda)] = [\Phi_0] \cdot [\lambda]^{-1} = \text{н}/\text{см}^3/\text{с}$ .

Из формул  $E = k_B T = p^2/2m$  и  $p = \hbar k = \hbar/\lambda$  устанавливаются соотношения между  $E$ ,  $T$  и  $\lambda$ :

$$T [\text{K}] = 11604E [\text{эВ}] = 949.34/\lambda^2 [\text{Å}], \quad E [\text{эВ}] = 0.08181/\lambda^2 [\text{Å}], \quad (10.2.3)$$

из которых следует, что температуре замедлителя  $T_0 = 293 \text{ K}$  соответствует энергия нейтронов  $E_0 = 0.0253 \text{ эВ}$ , длина волны  $\lambda_0 = 1.798 \text{ Å}$  и скорость  $v_0 = 2200 \text{ м/с}$ .

Распределение (10.2.2) имеет характерный вид кривой с максимумом, относительно быстро спадающее с обеих его сторон. Для определения положения максимума плотности потока следует вычислить первую производную  $\Phi(\lambda)$  и приравнять ее нулю:  $\lambda_m = \sqrt{2/5}\lambda_0 \approx 0.632 \cdot \lambda_0$  и, например, для  $\lambda_0 = 1.798 \text{ Å}$ ,  $\lambda_m \approx 1.137 \text{ Å}$ . На рис. 10.2.1 распределение  $\Phi(\lambda)$  показано для температуры  $T = 293 \text{ K}$  с указанными положениями  $\lambda_0$  и  $\lambda_m$ . Уменьшение  $\Phi(\lambda)$  со стороны малых длин волн определяется экспонентой  $\exp(-\lambda_0^2/\lambda^2)$ , а со стороны больших длин волн фактором  $1/\lambda^5$ . Сравнительно широкий максвелловский спектр нейтронов от источника и возможность смещать его максимум, изменяя температуру

замедлителя, позволяют в экспериментах использовать как малые, так и большие длины волн нейтронов.

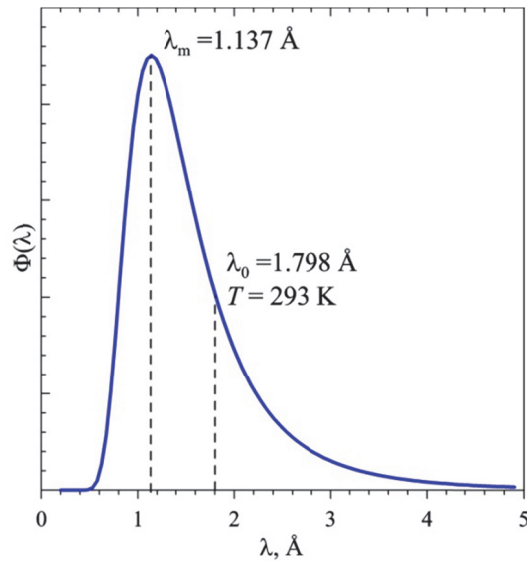


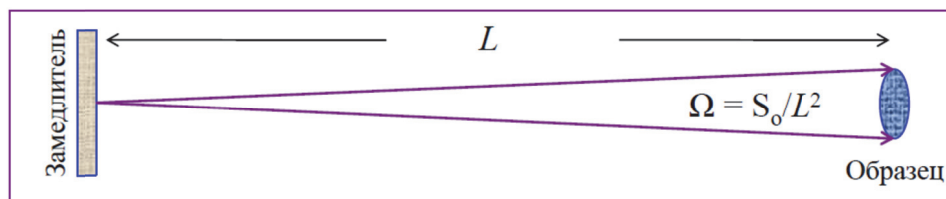
Рис. 10.2.1. Распределение Максвелла для плотности потока нейтронов при температуре 293 К.

Распределение (10.2.2) позволяет вычислить число нейтронов с длиной волны  $\lambda$  в интервале  $d\lambda$ , пересекающих площадь  $1 \text{ см}^2$  в 1 с во всех направлениях. Соответственно, на единицу телесного угла (1 стерадиан) приходится  $B = \Phi_0/4\pi$  [н/см<sup>2</sup>/с/ст]. Эту величину иногда называют *светимостью* (*яркостью*) источника (brightness/brilliance) (§ 1.4, формула (1.4.4)). Нейтронов с любой длиной волны в телесный угол  $\Omega$  с  $1 \text{ см}^2$  попадет  $N = \Phi_0(\Omega/4\pi)$ . Подставляя  $\Omega = S_0/L^2$ , где  $S_0$  – облучаемая потоком нейтронов площадь образца,  $L$  – расстояние от замедлителя до образца, получаем, что с  $1 \text{ см}^2$  замедлителя на образец в 1 с попадает  $N = \Phi_0(S_0/4\pi L^2)$  нейтронов. Наконец, умножая  $N$  на площадь замедлителя,  $S_m$ , получаем число нейтронов в 1 с, попадающих на всю площадь образца со всей площади замедлителя (рис. 10.2.2):

$$I = \Phi_0(S_m \cdot S_0/4\pi L^2). \quad (10.2.4)$$

Эту величину с размерностью  $[I] = \text{н/с}$  принято называть *интенсивностью* нейтронов на образце. При оценке интенсивности следует иметь в виду, что формула (10.2.4) справедлива, если поток нейтронов с поверхности замедлителя достаточно изотропен, нет каких-либо формирующих пучок нейтронов устройств между замедлителем и образцом, поглощение нейтронов на пути до образца пренебрежимо мало и линейные размеры замедлителя и образца  $\ll L$ . При полном потоке нейтронов  $\Phi_0 = 5 \cdot 10^{14} \text{ н/см}^2/\text{с}$  (типичная величина для

современных исследовательских стационарных реакторов), размерах излучающей поверхности  $100 \text{ см}^2$  (канал сечением  $10 \times 10 \text{ см}$ ) интенсивность нейтронов на образце, площадью  $1 \text{ см}^2$  и находящемся на расстоянии  $10 \text{ м}$  от источника, есть:  $I = (5 \cdot 10^{14} / 4\pi) \cdot (100 / 10^6) \approx 4 \cdot 10^9 \text{ н/с}$ . Это достаточно большая интенсивность, позволяющая осуществлять разнообразные эксперименты по рассеянию нейтронов в конденсированных средах.



**Рис. 10.2.2.** Схема, иллюстрирующая вычисление интенсивности нейтронов на образце с площадью  $S_0$  с замедлителя с площадью  $S_m$ .

Для импульсных источников помимо среднего по времени полного потока нейтронов  $\Phi_0$  и его распределения по длине волны  $\Phi(\lambda)$ , важной характеристикой является полный *импульсный* (или *пиковый*) *поток*  $\Phi_p$ , который определяется как

$$\Phi_p = \Phi_0 \cdot (T / \Delta t_s), \quad (10.2.5)$$

где  $\Delta t_s$  ширина импульса медленных нейтронов (если  $\Delta t_s$  зависит от длины волны, то используется ее среднее значение),  $T$  – период повторяемости импульсов. Импульсный поток  $\Phi_p$  иногда используют для качественного сравнения стационарных и импульсных источников, так как в первом приближении и для некоторых типов экспериментов именно  $\Phi_p$  определяет возможную светосилу спектрометра [Schober et al., 2008]. Однако это сравнение имеет только качественный характер, так как в большинстве спектрометров далеко не весь период  $T$  используется для регистрации «полезных» нейтронов, а разрешение спектрометра может быть довольно сложным образом связано с шириной импульса.

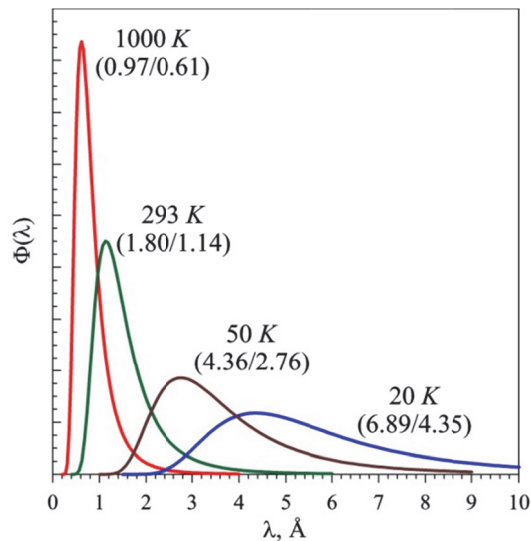
### § 10.3. Замедлители на стационарных источниках нейтронов

На исследовательских стационарных источниках нейтронов замедлителем является легкая или тяжелая вода, окружающая активную зону. Именно эта среда является основным источником тепловых нейтронов. Внутри основного располагаются дополнительные источники с веществом, нагретым до  $\sim 1000 \text{ К}$  («горячий» замедлитель) или охлажденным до  $\sim 20 \text{ К}$  («холодный» замедлитель), для смещения максвелловского спектра нейтронов в сторону больших или

меньших энергий (Глава 9, рис. 9.1.6). Максимум пространственного распределения тепловых нейтронов находится на некотором расстоянии от центра активной зоны (обычно 15 – 25 см) и именно в эти области направляются каналы для вывода пучков.

Дополнительные источники, смещающие спектр нейтронов в ту или другую сторону от  $E_0 = 0.025$  эВ, также располагаются в областях основного замедлителя с максимумом распределения тепловых нейтронов. На рис. 10.3.1 сравниваются максвелловские распределения для нескольких температур источника нейтронов. Видно, что использование горячего, теплого или холодных источников нейтронов дает возможность проведения экспериментов в очень широком диапазоне, на практике, начиная с очень малых ( $\sim 0.2$  Å) и вплоть до очень больших ( $\sim 20$  Å) длин волн.

В качестве материала для источника горячих нейтронов, как правило, используется графит (конкурентов у него фактически нет), который нагревается до температур  $>1000$  К. Для охлаждения спектра нейтронов удобными материалами являются жидкие водород или дейтерий с температурой 15 – 30 К и твердый или жидкий метан ( $\text{CH}_4$ ), температура которого регулируется от 20 до 100 К. Достоинством водорода является его технологичность, недостатком – неполная термализация нейтронов из-за отсутствия низколежащих энергетических уровней у молекулы  $\text{H}_2$ . У метана имеется ротационный уровень с  $E \approx 0.001$  эВ, что в сочетании с высокой плотностью ядер водорода делает метан эффективным материалом для холодных замедлителей.



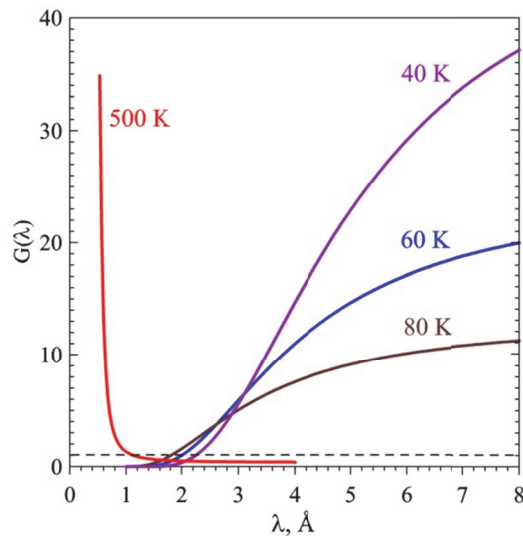
**Рис. 10.3.1.** Сравнение распределений Максвелла для плотности потока нейтронов в диапазоне температур замедлителя от 20 до 1000 К. Под температурой приведены (в Å)  $\lambda_0$  – параметр распределения и  $\lambda_m$  – положение максимума плотности потока. Площади под кривыми одинаковы, они пропорциональны  $\Phi_0$  – полному потоку нейтронов.



Выигрыш в потоке нейтронов от горячего или холодного замедлителя можно оценить из распределения Максвелла, вычисляя отношение

$$G(\lambda) = \Phi(\lambda, \lambda_1)/\Phi(\lambda, \lambda_0) = (\lambda_1/\lambda_0)^4 \cdot \exp[-(\lambda_1^2 - \lambda_0^2)/\lambda^2], \quad (10.3.1)$$

где  $\lambda_1$  соответствует температуре замедлителя,  $\lambda_0 = 1.8 \text{ \AA}$  – параметр распределения при 293 К. Типичные зависимости показаны на рис. 10.3.2. Следует иметь в виду, что в этой оценке не учтены утечка и захват нейтронов, которые (особенно захват) могут заметно уменьшить рассчитанные величины. Кроме того, вследствие неполной термализации эффективная температура нейтронного газа всегда выше (на 40 – 50 К), чем температура вещества замедлителя.



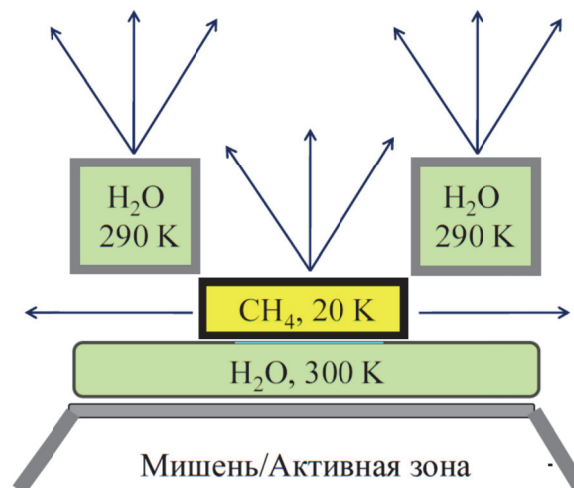
**Рис. 10.3.2.** Факторы выигрыша в потоке нейтронов от холодного источника с температурой: 40 К ( $\lambda_1 = 4.9 \text{ \AA}$ ), 60 К ( $\lambda_1 = 4.0 \text{ \AA}$ ) и 80 К ( $\lambda_1 = 3.4 \text{ \AA}$ ) и от горячего источника с  $T = 500 \text{ К}$  ( $\lambda_1 = 1.4 \text{ \AA}$ ).

#### § 10.4. Замедлители на импульсных источниках нейтронов

На импульсных источниках нейтронов задача уменьшения энергии нейтронов, образующихся в мишени, та же самая, что и на стационарных ядерных реакторах, но появляется дополнительное условие – сохранение временной структуры пучка нейтронов. Поэтому выбор толщины замедляющего слоя приходится делать исходя из двух противоречивых условий: она должна быть достаточно большой, чтобы обеспечить эффективность замедления и, соответственно, высокий поток тепловых нейтронов, но увеличение ширины

импульса быстрых нейтронов не должно быть значительным, поскольку требуется сохранить необходимую разрешающую способность спектрометров. Простейшим компромиссным вариантом замедлителя является слой воды толщиной  $\sim 5$  см. Он позволяет замедлить 15 – 20% попадающих в него быстрых нейтронов, а неизбежное уширение исходного импульса составляет приемлемые  $20 \div 100$  мкс. Обзор результатов, полученных на ранней стадии развития ансамбля замедлителей для импульсных источников нейтронов, выполнен в [Day, Sinclair, 1969].

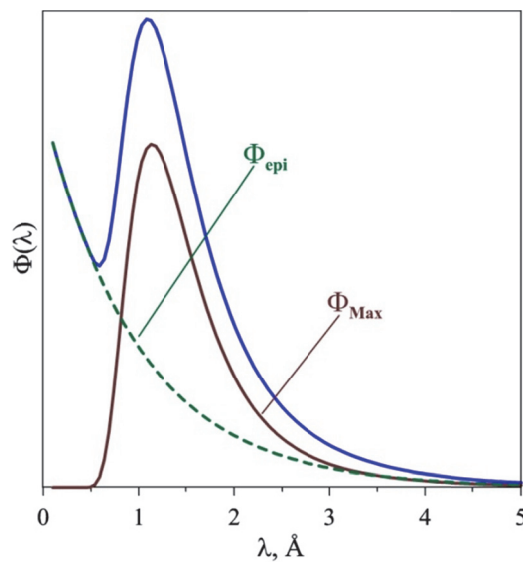
Современная тенденция выбора конструкции замедлителя состоит в оптимизации его расположения относительно активной зоны, выбора его формы, геометрических размеров и температуры, исходя из потребностей конкретных спектрометров, расположенных на пучках, исходящих из него. Один из многочисленных вариантов конструкции замедлителя показан на рис. 10.4.1. На этом рисунке отражен момент, который может быть важным для решения некоторых экспериментальных задач, а именно, выбор направления распространения пучка – радиального или тангенциального. В радиальных направлениях замедлитель обеспечивает комбинированный спектр от теплых (заполненных водой) и холодной (заполненной жидким метаном) своих частей. В тангенциальных направлениях распространяются только холодные нейтроны. Кроме того, эти направления отличаются и уровнем фона рецикличных или запаздывающих нейтронов, в тангенциальном направлении он всегда несколько меньше.



**Рис. 10.4.1.** Комбинированный замедлитель на импульсном источнике нейтронов. Быстрые нейтроны образуются в мишени протонного ускорителя или активной зоне импульсного реактора. Вплотную к зоне устанавливается водяной предзамедлитель, за которым располагается холодный метановый замедлитель. Дополнительные водяные замедлители (или блоки бериллия) повышают поток тепловых нейтронов. В радиальных направлениях распространяются пучки со смешанным (теплый + холодный) спектром. В тангенциальных направлениях – пучки с холодным спектром.

Показанные на рис. 10.4.1 дополнительные блоки воды, вместо которых часто используются блоки бериллия, играют роль отражателя нейтронов в холодный блок, что приводит к увеличению потока холодных нейтронов. Такая схема расположения узлов замедлителя получила название «*связанный замедлитель*» (coupled moderator). Именно она является основной на источниках с коротким импульсом для спектрометров с холодным спектром нейтронов. Ее недостатком является сильное затягивание заднего фронта импульса и поэтому для спектрометров, требующих высокого разрешения, например, для порошковых дифрактометров, используется схема, получившая название «*несвязанный замедлитель*» (decoupled moderator). В ней блок основного замедлителя окружается тонким слоем поглощающего тепловые нейтроны материала, что позволяет получить малую ширину импульса.

Важной особенностью импульсных источников является наличие довольно интенсивной надтепловой (или эпитепловой) компоненты в спектре нейтронов, что связано с неполным замедлением быстрых нейтронов до тепловой энергии (рис. 10.4.2). Соответственно, отсутствует необходимость в специальных горячих источниках нейтронов. Наличие этой компоненты позволяет проводить эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов в конденсированных средах вплоть до энергий порядка нескольких электрон-вольт.

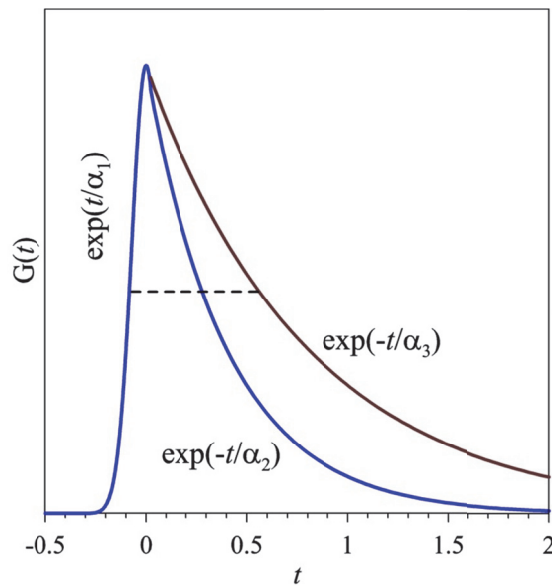


**Рис. 10.4.2.** Типичный вид спектра от замедлителя на импульсном источнике нейтронов. Из-за неполного замедления до тепловых энергий наряду с максвелловской ( $\Phi_{Max}$ ) присутствует интенсивная эпитепловая компонента ( $\Phi_{epi}$ ).

Специальный вопрос, требующий рассмотрения при создании замедлителя на импульсном источнике, – увеличение ширины импульса быстрых нейтронов, связанное с процессом замедления. Можно показать, что форма импульса

тепловых нейтронов во времени определяется сверткой импульса быстрых нейтронов от источника,  $G_1(t)$ , и функции, описывающей процесс замедления,  $G_2(t)$ ,  $t$  – время пролета. Обычно вклад источника можно с хорошей точностью представить как гауссову функцию, т.е.  $G_1(t) \sim \exp(-t^2/2\sigma_1^2)$ . В первом приближении отклик замедлителя можно представить в виде двух экспонент:  $G_2(t) \sim \exp(t/\alpha_1)$  при  $t < 0$  и  $G_2(t) \sim \exp(-t/\alpha_2)$  при  $t > 0$ . Вследствие того, что  $\alpha_1 \ll \alpha_2$ , левое и правое крылья этой функции сильно различаются, а именно, ее характерной особенностью является очень быстрый подъем и медленно спадающий хвост. Результирующее распределение, являющееся сверткой  $G_1(t)$  и  $G_2(t)$ , представляется довольно сложной параметрической функцией [Ikeda, Carpenter, 1985].

На импульсных источниках с коротким импульсом ( $\sigma_1 \sim 1$  мкс) вкладом источника можно пренебречь, форма импульса замедлившихся нейтронов в основном определяется свойствами замедлителя, что приводит к сильно асимметричному профилю, особенно на замедлителях типа coupled. Усложняющим общую картину эффектом является рост постоянной  $\alpha_2$  с увеличением длины волны, т.е. импульс становится более асимметричным (рис. 10.4.3). Для источника с длинным импульсом, т.е. с шириной исходного импульса более 300 мкс, вклад замедлителя не столь велик, вследствие чего и ширина, и форма импульса слабо изменяются в широком интервале длин волн.

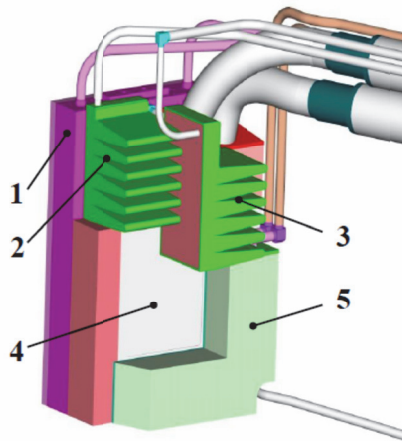


**Рис. 10.4.3.** Типичная форма импульса тепловых и холодных нейтронов на импульсном источнике с коротким импульсом. Спад заднего фронта определяется временем замедления нейтронов, которое больше для холодных нейтронов ( $\alpha_3 \approx 2\alpha_2$ ). Шкала времени – в произвольных единицах.

### § 10.5. Замедлители на импульсном реакторе ИБР-2

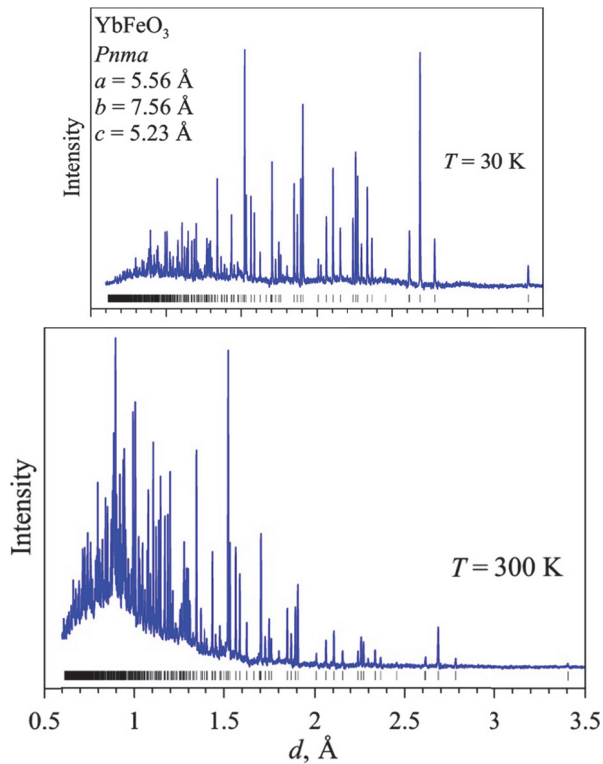
Для спектрометров на стационарном источнике нейтронов, использующих монохроматический пучок, выбор оптимального замедлителя, как правило, не является проблемой. Достаточно расположить спектрометр на пучке, обеспечивающем максимальную интенсивность нейтронов с нужной длиной волны. Для импульсного источника нейтронов ситуация намного сложнее поскольку требуется обеспечить оптимальные условия для работы в широком интервале длин волн. Рассмотрим в качестве конкретного примера, как эта проблема была решена на действующем импульсном источнике нейтронов, реакторе ИБР-2.

Еще до пуска ИБР-2 (в 1984 году) в результате многочисленных экспериментов по поиску оптимальной формы замедлителя было показано [Гундорин, Назаров, 1980], что лучший результат получается для замедлителя, выходная поверхность которого имеет в сечении пилообразную форму (рис. 10.5.1). Впоследствии такой замедлитель получил название «гребенчатого» (comb-like или grooved moderator). Поток тепловых нейтронов от него оказался в среднем примерно в 2.5 раза выше, чем от плоского замедлителя. Конечно, увеличение эффективной толщины водяного слоя приводило к увеличению вклада в ширину импульса (в ~2 раза), но для многих типов экспериментов такое увеличение приемлемо и все замедлители на ИБР-2 были сделаны гребенчатыми.



**Рис. 10.5.1.** Схема одного из комбинированных замедлителей на реакторе ИБР-2, предназначенного для нескольких спектрометров. Цифрами обозначены водяной предзамедлитель (1), водяные гребенчатые замедлители (2) и (3), выходная поверхность холодного замедлителя (4), водяной плоский замедлитель (5). Трубы в верхней части рисунка предназначены для подачи воды и обеспечения работы холодного замедлителя. Замедлитель предназначен для четырех спектрометров, расположенных на разных каналах (пучках нейтронов), поэтому его конструкция обеспечивает разные типы спектра – тепловой, холодный и комбинированный.

С начала 1990-х годов для ИБР-2 начали разрабатываться и тестироваться холодные замедлители на основе метана. Проведенные в 1999 году дифракционные эксперименты на варианте метанового замедлителя с водяным предзамедлителем и с отражателем из Ве, выполненного в виде гребенки [Балагуров и др., 2000], показали, что для широкого класса задач он предоставляет лучшие условия, чем теплый водяной замедлитель. Основными факторами явились увеличение полного потока в  $\sim 2$  раза и сдвиг рабочего диапазона длин волн в область более высокой разрешающей способности. Особенно важными эти факторы оказались для анализа сложных кристаллических и магнитных структур и в экспериментах с длиннопериодными структурами и в реальном времени. Сравнение дифракционных спектров ортоферрита  $\text{YbFeO}_3$  с  $V_c \approx 220 \text{ \AA}^3$ , измеренных с теплым и холодным замедлителями, показано на рис. 10.5.2. Из-за сравнительно больших параметров элементарной ячейки этого соединения при  $d_{\text{hkl}} < 1.5 \text{ \AA}$  дифракционные пики перекрываются и их анализ затруднен. Холодный спектр нейтронов позволяет с хорошей статистикой измерять пики при больших  $d_{\text{hkl}}$ , где их перекрытие отсутствует или невелико, и это заметно улучшает качество анализа структурных данных.



**Рис. 10.5.2.** Сравнение дифракционных спектров ортоферрита  $\text{YbFeO}_3$  (ромбическая сингония), измеренных при температурах замедлителя 300 К и 30 К.

К сожалению, метан не обладает необходимой радиационной стойкостью, при облучении в нем образуется радиолитический водород и высокомолекулярные продукты, что приводит к необходимости частой смены (примерно раз в сутки) рабочего вещества. Поиски среди других углеводородов привели к выводу, что оптимальным сочетанием функциональных (высокий выход холодных нейтронов) и технологических (высокая радиационная стойкость) свойств обладает мезитилен ( $C_9H_{12}$ ) [Шабалин, Куликов, 2004; Шабалин, 2005]. Именно на его основе для ИБР-2 были изготовлены новые версии холодных замедлителей, первый из которых начал работу в 2013 году.

Уникальной особенностью холодных замедлителей на ИБР-2 является то, что рабочее вещество (смесь мезитилена с *m*-ксилолом) представляет собой шарики диаметром около 3.5 мм (рис. 10.5.3), которые готовятся заранее на специальной установке и хранятся в жидком азоте. Перед началом очередной сессии работы реактора производится загрузка шариков в камеру замедлителя, после ее окончания шарики расплавляются и вещество сливается в емкость для сбора. Рабочая температура замедлителя – 30 К, что обеспечивает эквивалентную температуру нейтронного газа около 70 К. Практика показала, что вещество замедлителя способно выдерживать радиационную нагрузку при непрерывной работе реактора до 10 суток. Увеличение потока холодных нейтронов составило при  $\lambda > 4 \text{ \AA}$  от 5 до 13 раз [Ананьев и др., 2014].

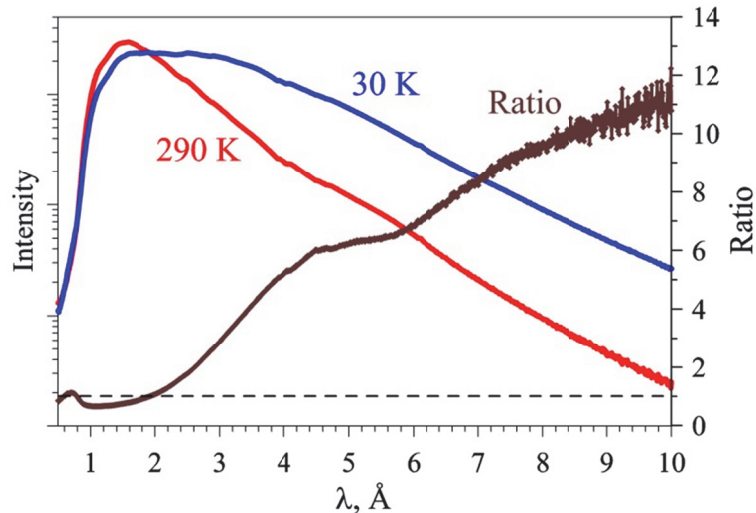


**Рис. 10.5.3.** Шарики (гранулы,  $\varnothing 3.5$  мм) из смеси мезитилена с *m*-ксилолом, используемые в качестве рабочего вещества в холодных замедлителях на ИБР-2.

В 2020 году на ИБР-2 был введен в эксплуатацию второй холодный замедлитель с аналогичной идеологией, обеспечивающий работу трех дифрактометров и спектрометра малоуглового рассеяния. Полученный на нем фактор выигрыша при его переводе в холодное состояние показан на рис. 10.5.4.

На импульсном реакторе НЕПТУН, который должен прийти на смену ИБР-2 после 2037 года, предполагается около 30 пучков для размещения спектрометров. Проведенный анализ показал, что весьма разнообразные запросы на формирование спектра нейтронов могут быть обеспечены, если источник будет снабжен четырьмя замедлителями с разной температурой и разных линейных

размеров. Под разными размерами предполагается, что водяные предзамедлители будут иметь большие размеры (~40×40 см), холодные замедлители могут быть двух типов: «малые» (~10×10 см) и «большие» (~20×20 см). Температура холодных замедлителей (с рабочим веществом на основе мезитилена) может быть «низкой» (<30 К) или «средней» (~80 К). Один из замедлителей будет «биспектральным» (300 + 80 К). Не исключается, что может быть использована гребенчатая форма выходной поверхности некоторых замедлителей. Важно, что конструкция прилегающих к активной зоне областей будет допускать сравнительно небольшое (2 – 3 м) расстояние от поверхности замедлителя до входного окна нейтроновода.



**Рис. 10.5.4.** Эффективные спектры нейтронов (логарифмическая шкала) от мезитиленового замедлителя в теплом (290 К) и холодном (30 К) состояниях, измеренные по рассеянию на ванадии и коэффициент выигрыша (потерь) в потоке нейтронов на образце (Ratio, правая шкала).

Окончательный выбор состава и параметров системы замедлителей будет сделан на основе Монте-Карло моделирования реактора и его окружения, оптимизации материала и геометрических размеров замедлителей, расчета влияния теплых и холодных бериллиевых отражателей на спектральный состав и ширину импульса.

#### Рекомендованная литература к главе 10

Шабалин Е.П. (2005), *Холодные замедлители нейтронов*, ЭЧАЯ **36**, 1425-1444.



## ГЛАВА 11. ФОРМИРОВАНИЕ ПУЧКОВ НЕЙТРОНОВ

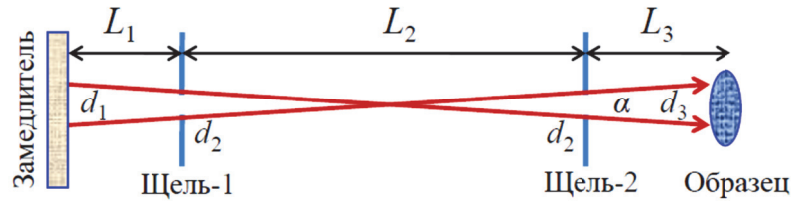
Применение рассеяния нейтронов для исследований конденсированных сред основано на использовании пучков нейтронов от источника, распространяющихся в заданных направлениях. Требования к нейтронным пучкам зависят от применяемой конкретной методики (дифракция, рефлектометрия и др.), а зачастую и от конкретной решаемой задачи. Соответственно, устройства, с помощью которых происходит формирование пучков, исключительно разнообразны. Многие из устройств формирования делаются стационарными, но в некоторых случаях они должны иметь степени свободы для изменения коллимации, энергетического диапазона и других параметров пучка. Близкой к формированию пучка задачей является анализ характеристик рассеянных на образце нейтронов. Одна из особенностей устройств формирования – их постоянное совершенствование, соответственно на общих и на специализированных нейтронных конференциях обязательно присутствует секция «техника эксперимента», на которой, как правило, в большом количестве представляются доклады по системам формирования пучков, анализу и детектированию рассеянных нейтронов. В связи с этим, далее рассмотрены только самые общие идеи, заложенные в наиболее широко используемые конструкции устройств формирования пучков нейтронов.

### § 11.1. Коллиматоры

Коллиматоры – простые и наиболее часто используемые устройства для формирования пучков нейтронов, а наиболее простой коллимирующей конструкцией является система из двух щелей (рис. 11.1.1). Предназначение коллиматора – задание размеров (горизонтального и вертикального) и расходимости пучка на образце. Из простого геометрического рассмотрения ясно, что угол, определяющий расходимость пучка, есть:  $\alpha = 2d_2/L_2$  (в предположении, что  $L_2 \gg d_2$ ). Видимый размер светящейся поверхности замедлителя и размер пучка на образце есть:  $d_1 = (2L_1/L_2 + 1) \cdot d_2$  и  $d_3 = (2L_3/L_2 + 1) \cdot d_2$ . Распределение потока нейтронов по образцу – трапециевидное, с шириной плоской части равной  $d_2$  и шириной в основании равной  $d_3$ , т.е. крутизна склонов трапеции зависит от  $L_3/L_2$ .

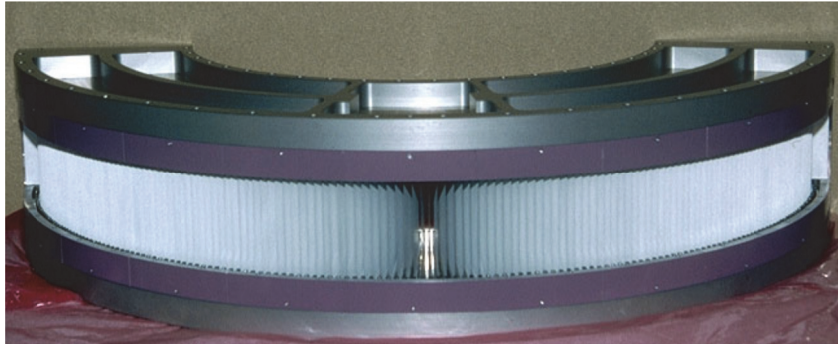
Как правило, коллиматоры изготавливаются в виде прямоугольных или трапециевидных коробов, входная и выходная поверхности которых играют роль щелей, т.е. коллимация пучка осуществляется в двух измерениях. Для предотвращения отражений нейтронов от стенок коллиматора, что может ухудшить коллимацию, их внутренняя поверхность делается из поглощающего нейтроны материала.

Основные параметры коллиматора – ширина щелей и расстояние между ними – подбираются в зависимости от типа эксперимента и варьируются очень сильно. Например, в экспериментах по малоугловому рассеянию нейтронов достаточно иметь коллимацию первичного пучка на уровне нескольких градусов, тогда как для дифрактометров высокого разрешения коллимация пучка перед монохроматором и после него может достигать до 10 угловых минут. В тех случаях, когда требуется иметь большое сечение пучка, но высокий уровень коллимации, используются многощелевые устройства (*соллеровские коллиматоры*).



**Рис. 11.1.1.** Система двух щелей (шириной  $d_2$ ), задающих размер ( $d_3$ ) и расходимость пучка ( $\alpha$ ) на образце. Нейтроны могут достигнуть образца только с поверхности замедлителя размером  $d_1$ .

Для исключения попадания в детектор нейтронов, рассеянных на устройствах окружения образца (криостатах, печах), между образцом и детектором устанавливается радиальный соллеровский коллиматор (рис. 11.1.2). Его особенностью является возможность выделения сравнительно малого наблюдаемого объема в сочетании с охватом большого интервала углов рассеяния нейтронов на образце. Для исключения провалов в регистрируемой детектором интенсивности радиальные коллиматоры могут изготавливаться осциллирующими вокруг вертикальной оси.



**Рис. 11.1.2.** Радиальный соллеровский коллиматор (дифрактометр HRPT, PSI), изготовленный из лавсановых фольг, покрытых окисью Gd. Коллиматор обеспечивает угол обзора около  $150^\circ$  с коллимацией пучка  $\sim 1^\circ$ .

## § 11.2. Нейтронные зеркала

В Главе 3 было показано, что наличие у нейтронов низких энергий волновых свойств означает, что для них оказываются справедливыми многие известные законы оптики электромагнитных волн. Рассматриваемые в настоящем разделе устройства являются типичным примером применения принципов оптики к формированию нейтронных пучков.

Для нейтронов, также как для света, можно ввести показатель преломления нейтронных волн в среде, который определяется как  $n = k_1/k_0$ , где  $k_0$  и  $k_1$  – волновые вектора нейтрона в вакууме и среде (3.1.1). Общее рассмотрение отражения нейтронов от границы двух сред проведено в Главе 3 (§ 3.1 и 3.2), где при решении уравнения Шредингера среда рассматривалась как обладающая некоторой плотностью длины рассеяния и получено выражение для показателя преломления в случае одноатомной среды (3.1.5). Для намагниченной среды оно обобщается на:

$$n = 1 - \lambda^2 / 2\pi \cdot [Nb \pm m / (2\pi\hbar^2) \cdot (\mu_n B)] \quad (11.2.1)$$

где  $N$  – число ядер в  $1 \text{ см}^3$ ,  $b$  – их когерентная длина рассеяния,  $m$  и  $\mu_n$  – масса и магнитный момент нейтрона,  $B$  – магнитная индукция среды. Знаки  $\pm$  соответствуют параллельному или антипараллельному расположению векторов  $\vec{\mu}$  и  $\vec{B}$  (см. § 7.3). Из этой формулы следуют возможности зеркального отражения нейтронов от гладких поверхностей и их поляризации при отражении от намагниченных сред. Рассмотрим сначала явление зеркального отражения и устройства его использующие.

Если показатель преломления действителен, то общее выражение для коэффициента отражения нейтронов от зеркальной поверхности есть [Goldberger, Seitz, 1947, Гуревич, Тарасов, 1965, с. 70]:

$$R(\alpha) = \left[ \frac{\left[ \sin \alpha - (n^2 - \cos^2 \alpha)^{1/2} \right]^2}{\left[ \sin \alpha + (n^2 - \cos^2 \alpha)^{1/2} \right]^2} \right]^2, \quad (11.2.2)$$

где  $\alpha$  – угол между поверхностью и пучком нейтронов (угол скольжения). При  $n^2 < \cos^2 \alpha$  в числителе и знаменателе коэффициента отражения стоят комплексно сопряженные выражения и, следовательно,  $|R|^2 \equiv 1$ . Угол  $\alpha_c$ , при котором  $\cos \alpha_c = n$  называют критическим углом отражения, т.к.  $R = 1$  при  $\alpha \leq \alpha_c$ . Как показано в § 3.1 при чисто ядерном взаимодействии:

$$\alpha_c = \lambda \sqrt{Nb/\pi}. \quad (11.2.3)$$

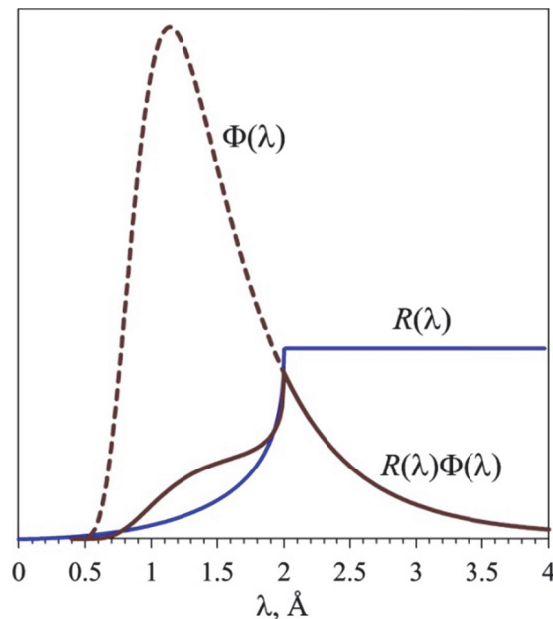
Заменяя в (11.2.2)  $\sin \alpha$  и  $\cos \alpha$  на их аппроксимации при малых  $\alpha$ , получаем для  $R$ :

$$R(x) = \left[ \frac{\left[ 1 - (1 - x^2)^{1/2} \right]^2}{\left[ 1 + (1 - x^2)^{1/2} \right]^2} \right]^2, \quad (11.2.4)$$

где  $x = \alpha_c/\alpha$ .

Проверим, действительно ли  $n \approx 1$ , а  $\alpha_c \ll 1$ . Например, монокристаллический Ni имеет кубическую гранецентрированную элементарную ячейку с  $a = 3.524 \text{ \AA}$  и объем, приходящийся на 1 атом, составляет  $V_a = (3.524 \cdot 10^{-8})^3 / 4 = 10.94 \cdot 10^{-24} \text{ см}^3$ , а число ядер в  $1 \text{ см}^3$   $N = 1/V_a = 0.091 \cdot 10^{24} \text{ см}^{-3}$ . Для естественной смеси изотопов никеля  $b = 1.03 \cdot 10^{-12} \text{ см}$  и  $1 - n \approx 5 \cdot 10^{-7}$ ,  $\alpha_c \approx 1.72 \cdot 10^{-3} \text{ рад} \approx 6 \text{ угл. мин.}$  для  $\lambda = 1 \text{ \AA}$ , т.е. предположенные приближения выполняются с хорошей точностью. Из (11.2.4) следует, что при  $\alpha \gg \alpha_c$ , коэффициент отражения быстро уменьшается с ростом угла скольжения:  $R(\alpha) \sim 1/\alpha^4$  (закон Порода, подробнее см. раздел 3.2.2.).

На стационарном источнике нейтронов для анализа эффектов зеркального отражения нейтронов используется хорошо коллимированный монохроматический пучок нейтронов, и коэффициент отражения измеряется как функция угла скольжения или волнового вектора нейтрона. На импульсном источнике нейтронов более эффективным методом является использование максвелловского распределения и измерение зависимости коэффициента отражения от длины волны при фиксированном угле скольжения  $\alpha$ . Как выглядит в этом случае измеряемое распределение нейтронов и коэффициент отражения показано на рис. 11.2.1. Поскольку  $\alpha_c \sim \lambda$ , то  $R(\lambda) \equiv 1$  при  $\lambda \geq \lambda_c = \alpha_c / \sqrt{Nb/\pi}$ . В этом случае спектральное распределение в отраженном пучке будет определяться функцией  $R(\lambda)\Phi(\lambda)$ , где  $\Phi(\lambda)$  – исходное (максвелловское) распределение.



**Рис. 11.2.1.** Коэффициент отражения  $R(\lambda)$  как функция длины волны при фиксированной величине  $\alpha$ . Расчет проведен для критической длины волны  $\lambda_c = 2 \text{ \AA}$ . Пунктирная линия – спектральное распределение  $\Phi(\lambda)$  в падающем на зеркало пучке. Сплошная линия – спектральное распределение  $R(\lambda)\Phi(\lambda)$  в отраженном пучке.

Формулы (11.2.2) и (11.2.3) приведены для случая отражения от зеркала, находящегося в вакууме. Но очевидно, что отражение происходит на поверхности раздела любых двух сред, если их показатели преломления различны. В этом случае вместо  $Nb$ , следует использовать величину  $(Nb)_2 - (Nb)_1$ , где индексы 1 и 2 относятся к средам, из которой и на которую падают нейтроны.

Приведенные формулы справедливы в пренебрежении влияния поглощением нейтронов в материале зеркала и неизбежного присутствия шероховатостей на его поверхности. Их влияние на отражение нейтронов от границы раздела сред рассмотрено в § 3.2. В частности, учет поглощения приводит к появлению в показателе преломления мнимого члена, а именно:

$$n = 1 - (\lambda^2/2\pi) \cdot Nb - i(\lambda/4\pi) \cdot N(\sigma_a + \sigma_{in}), \quad (11.2.5)$$

где  $\sigma_a$ ,  $\sigma_{in}$  – сечения поглощения и некогерентного рассеяния материала зеркала. Из рассмотрения коэффициента отражения для этого случая следует, что при всех углах скольжения  $R(\alpha) < 1$ , а резкий излом при  $\alpha = \alpha_c$  несколько размывается (рис. 3.2.4).

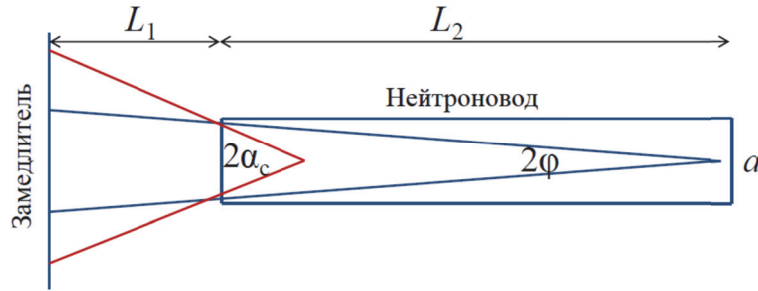
### § 11.3. Нейтронноводы

Зеркальные нейтронноводы начали широко применяться в конструкциях нейтронных спектрометров после первых удачных экспериментов в середине 1960-х годов. С их помощью удастся увеличить поток нейтронов на образце и, что не менее важно, вывести образец из прямой видимости источника нейтронов, в результате чего фон быстрых нейтронов и  $\gamma$ -квантов резко уменьшается. Инициатором теоретических и экспериментальных исследований зеркальных нейтронноводов считается Х. Майер-Лейбниц [Maier-Leibnitz, Springer, 1963].

В простейшем варианте нейтронновод представляет собой короб, все четыре внутренние стенки которого могут зеркально отражать распространяющиеся внутри него нейтроны. Соответственно, все рассуждения относительно нейтронных зеркал справедливы и для нейтронноводов, с учетом того, что современные их конструкции весьма разнообразны и в некоторых случаях довольно сложны.

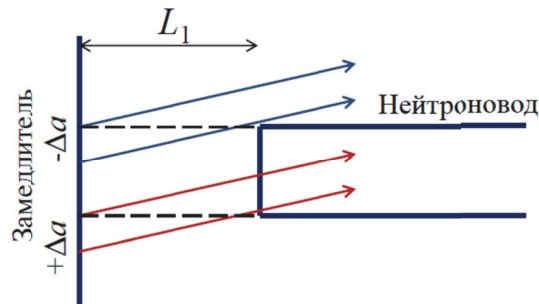
Существенное увеличение потока нейтронов на выходе зеркального нейтронновода происходит в том случае, если критический угол отражения от его стенок превышает соответствующий геометрический угол  $\varphi$  (рис. 11.3.1). Из рисунка видно, что  $\varphi \approx a/2(L_1 + L_2)$  и если  $\alpha_c > \varphi$ , то видимая поверхность замедлителя увеличивается. Увеличение потока будет пропорционально отношению  $\alpha_c/\varphi$ . Пусть, например,  $a = 1$  см,  $L_2 = 20$  м,  $L_1 \ll L_2$ ,  $\alpha_c \approx 1.72 \cdot 10^{-3} \cdot \lambda$ . Тогда для нейтронов с  $\lambda = 2 \text{ \AA}$  увеличение потока составит  $G = 1.72 \cdot 10^{-3} \cdot \lambda \cdot (2L_2/a) \approx 14$ . Если все стенки нейтронновода с квадратным сечением отражающие, то эффект будет квадратичным ( $G \approx 196$ ), а для оценки потока на

его выходе можно считать, что нейтроны от источника концентрируются в телесном угле  $\Omega_c \approx (2\alpha_c)^2$ .



**Рис. 11.3.1.** Иллюстрация эффекта увеличения потока нейтронов при использовании зеркального нейтроновода с длиной  $L_2 \gg L_1$ . Поток увеличивается, если  $\alpha_c > \phi$ . Масштабы не соблюдены.

Можно показать, что в первом приближении  $G$  не зависит от  $L_1$ , пока видимый под критическим углом размер замедлителя не превышает его геометрический размер. Из рис. 11.3.2 видно, что если нейтроновод придвинут вплотную к замедлителю, то нейтроны собираются с размера, равного размеру входного окна нейтроновода. При отодвигании нейтроновода на расстояние  $L_1$ , видимый размер замедлителя увеличивается с каждой стороны на  $\Delta a$ , но примерно такая же часть замедлителя перестает поставлять нейтроны в нейтроновод. Т.е., действительно, происходит компенсация изменения потока нейтронов пока, начиная с больших длин волн, величина  $+\Delta a$  не выходит за геометрический размер замедлителя.



**Рис. 11.3.2.** Иллюстрация эффекта независимости потока в нейтроновode от расстояния  $L_1$ . При отодвигании нейтроновода от замедлителя увеличение видимого размера (обозначено  $+\Delta a$ ) компенсируется увеличением размера (обозначено  $-\Delta a$ ), с которого нейтроны пролетают мимо нейтроновода.

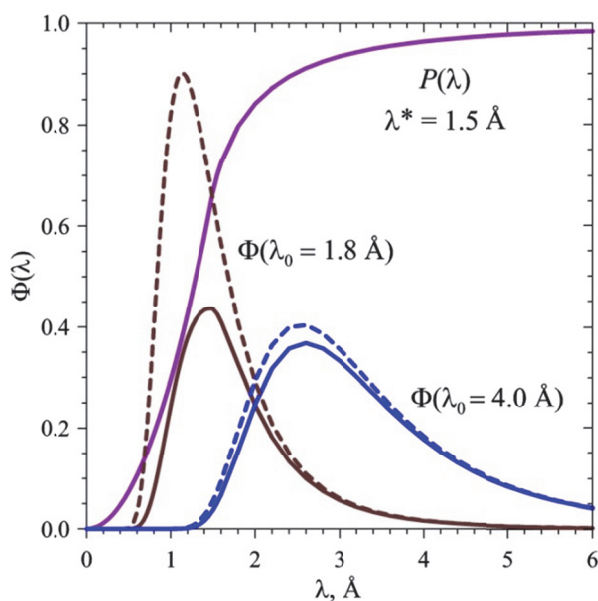
В настоящее время для формирования пучков в основном используются нейтроноводы, изогнутые с определенным радиусом кривизны. Они позволяют вывести образец из прямой видимости источника и уменьшить уровень фона. Из простого геометрического рассмотрения следует, что длина прямой видимости

для нейтроновода равномерно изогнутого в горизонтальной плоскости есть  $L_0 = (8dR)^{1/2}$ , где  $d$  – ширина,  $R$  – радиус изгиба нейтроновода, причем  $d \ll R$ . На выходе нейтроновода его ось будет смещена от направления прямого пучка на расстояние равное  $4d$ .

Функция пропускания такого нейтроновода с хорошим приближением может быть описана формулами:

$$T(\lambda) = 2/3 \cdot x^2, \text{ при } x \leq 1 \text{ и } T(\lambda) = 2/3 \cdot x^2 [1 - (1 - 1/x^2)^{3/2}], \text{ при } x \geq 1, \quad (11.3.1)$$

где  $x = \lambda/\lambda^* = \alpha_c/\alpha^*$  – безразмерный параметр,  $\lambda^* = \alpha^*/\sqrt{Nb/\pi}$ ,  $\alpha^* = \sqrt{2d/R}$  – характеристические длина волны и угол нейтроновода, связанные с его шириной,  $d$ , и радиусом кривизны,  $R$ . На рис. 11.3.3 показано как изменяются максвелловские распределения с разной температурой после прохождения пучка нейтронов сквозь изогнутый нейтроновод с  $\lambda^* = 1.5 \text{ \AA}$ . При радиусе кривизны, соответствующем 50% прохождению нейтронов с  $\lambda = 1.3 \text{ \AA}$ , поток нейтронов от замедлителя с  $T = 60 \text{ K}$  ослабляется незначительно, тогда как при  $T = 293 \text{ K}$  потеря в полном потоке нейтронов велика. Отсюда следует, что изогнутые нейтроноводы эффективны для пучков холодных нейтронов, но для тепловых нейтронов неизбежны потери в полной интенсивности.



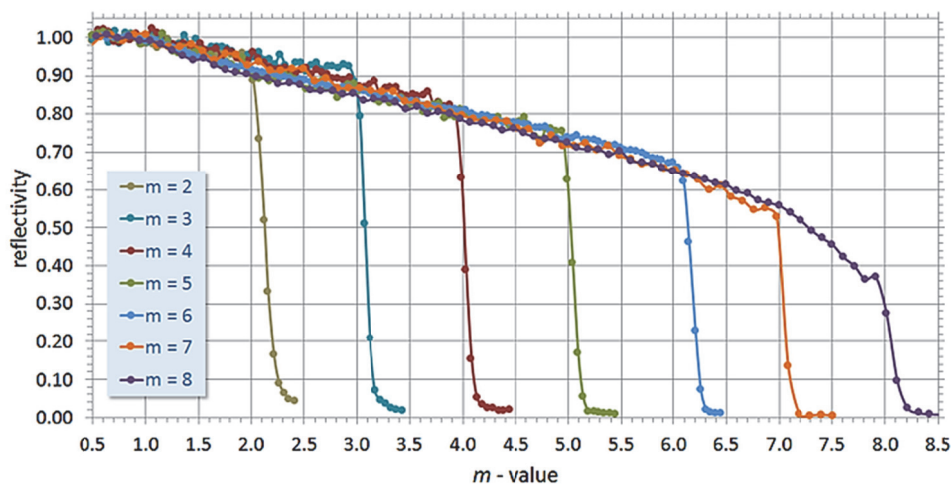
**Рис. 11.3.3.** Максвелловские спектры нейтронов (пунктирные линии) от замедлителя с  $T = 293 \text{ K}$  ( $\lambda_0 = 1.8 \text{ \AA}$ ) и  $T = 60 \text{ K}$  ( $\lambda_0 = 4.0 \text{ \AA}$ ) и их изменения (сплошные линии) после прохождения пучка нейтронов сквозь изогнутый нейтроновод с характеристической длиной волны  $\lambda^* = 1.5 \text{ \AA}$ . Полный поток нейтронов от теплового замедлителя уменьшается в  $\sim 2$  раза, тогда как поток от холодного замедлителя ослабляется незначительно.

Одним из нежелательных свойств изогнутого нейтроновода является концентрация нейтронов с малыми длинами волн ( $\lambda < \lambda^*$ ) около внешней стенки нейтроновода. Возникают так называемые «гирляндные» отражения и распределение потока на выходе нейтроновода становится неравномерным. Для устранения этого эффекта головная часть нейтроновода делается изогнутой, а перед образцом помещаются прямые секции, что приводит к частичному выравниванию потока на выходе. В этом случае аналитический расчет функции пропускания оказывается слишком сложен, и она рассчитывается численно с использованием симуляции по методу Монте-Карло в программных пакетах VITESS или McStas.

Корректный расчет функции пропускания нейтроновода предполагает учет довольно большого числа факторов, уменьшающих отражательную способность его стенок. В их число входят уже упомянутые при рассмотрении коэффициента отражения от зеркала поглощение в стенках и шероховатость их поверхности, полигональность стенок изогнутого нейтроновода, зазоры между секциями, поглощение в заглушках и воздушных промежутках и т.д. Если усредненный коэффициент отражения при одном соударении нейтрона со стенкой нейтроновода есть  $R$ , то коэффициент отражения при  $n$  соударениях есть  $R_n = R^n$  и, если, например,  $R = 0.99$ , то  $R_n \approx 0.9$  при  $n = 10$ . Естественно, в наибольшей степени эффект уменьшения пропускания проявляется для гирляндных отражений и для нейтронов с большими длинами волн.

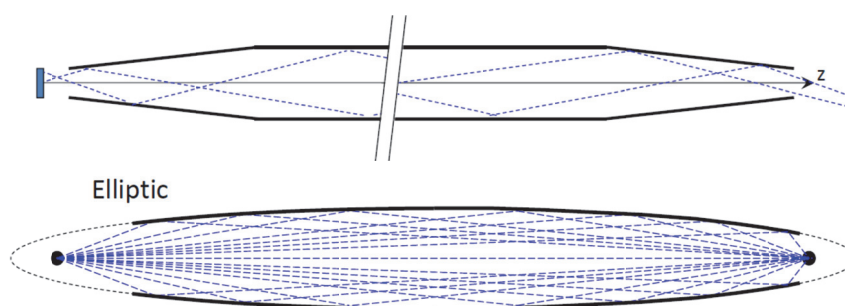
Для увеличения потока на выходе нейтроновода на его стенки напыляется изотоп  $^{58}\text{Ni}$ , когерентная длина рассеяния которого есть  $b = 1.44 \cdot 10^{-12}$  см, т.е. критический угол отражения больше в  $\approx 1.4$  раза, по сравнению с естественной смесью изотопов никеля. Еще одной возможностью увеличения  $\alpha_c$  является использование сложных многослойных аперидических покрытий, которые принято называть «суперзеркальными». Оказывается, что напыление большого количества пар слоев разных элементов, например, Ni/Ti с постепенным увеличением их периодов, позволяет в несколько раз расширить область полного (почти) отражения. Основной характеристикой нейтронного суперзеркала является параметр  $m$ , равный отношению критических углов для суперзеркала и для естественной смеси изотопов никеля. В основном используются суперзеркала с  $m \approx 2$ , но при необходимости этот параметр можно увеличить в несколько раз (рис. 11.3.4). Следует, однако, отметить, что увеличение  $\alpha_c$  обязательно приводит к увеличению расходимости пучка на выходе нейтроновода, что зачастую бывает нежелательным эффектом, т.к. приводит к увеличению геометрического вклада в функцию разрешения спектрометра. Аналогичный эффект возникает при фокусировке пучка с помощью конической выходной части нейтроновода – увеличиваются как поток на образце, так и угловая расходимость пучка. Эти особенности использования нейтроноводов есть следствие общего закона (теоремы Лиувилля), справедливого для замкнутых механических систем и утверждающего, что фазовый объем потока частиц сохраняется.





**Рис. 11.3.4.** Коэффициент отражения Ni/Ti суперзеркала для покрытий с  $2 \leq m \leq 8$ . График с официального сайта компании SwissNeutronics.

Помимо прямых и изогнутых, с 2000-х годов начали использоваться нейтроноводы, предложенные Ф.Мезеи и получившие название «баллистических» [Mezei, 1997]. Вместо равномерного, их поперечное сечение делается переменным, в простейшем варианте расширяющимся – (почти) постоянным – сужающимся (рис. 11.3.5). Закон изменения сечения может быть линейным, параболическим или эллиптическим. В таком нейтроноводе удастся заметно уменьшить число отражений от стенок (в пределе до одного) и тем самым снизить потери нейтронов, т.к. коэффициент отражения всегда несколько меньше единицы. Особенно это существенно для протяженных нейтроноводов и нейтронов с большими длинами волн. Проблемой, возникающей при использовании баллистических нейтроноводов, является невозможность их изгиба без, по крайней мере, частичной потери свойств.



**Рис. 11.3.5.** Иллюстрация принципа действия баллистических нейтроноводов с линейно (вверху) и эллиптически изменяющейся конфигурацией стенок.

### § 11.4. Монохроматоры

Монохроматорами называются устройства, с помощью которых из всего максвелловского распределения нейтронов от источника выделяется узкая (монохроматическая) линия с шириной на уровне  $0.01 \text{ \AA}$ . Как правило, для этой цели используются брэгговское отражение от монокристалла и именно оно рассматривается в этом разделе. В некоторых случаях, для монохроматизации пучка применяются механические прерыватели, которые будут рассмотрены далее.

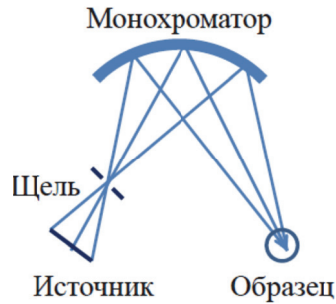
Долгое время в качестве монохроматоров использовались большие плоскопараллельные пластины монокристаллов металлов (в основном Cu, Zn, Pb) с мозаичностью около  $30'$ . Затем, в середине 1970-х годов, удалось наладить выращивание кристаллов пиролитического графита, которые отличались большой отражательной способностью, малыми поглощением и некогерентным рассеянием. Однако, применение графита ограничивалось получением пучков с длиной волны  $>1.5 \text{ \AA}$ , что связано с довольно большим межплоскостным расстоянием  $d_{002} \approx 3.37 \text{ \AA}$  для отражения (002), которое только и могло быть использовано. Примерно в это же время началась активная теоретическая и экспериментальная разработка фокусирующих монохроматоров. Фокусировку нейтронных траекторий можно получить с помощью многоэлементного монохроматора, в котором эффект достигается подбором ориентации отдельных монокристаллов, или с помощью совершенного монокристалла (почти всегда это кремний), изогнутого специальным образом. В основном, фокусировка используется для увеличения потока нейтронов на образце, и в этом случае называется фокусировкой в реальном пространстве. Ее не следует путать с фокусировкой в обратном пространстве, с помощью которой удастся уменьшить размер наблюдаемой в обратном пространстве области, что приводит к повышению разрешающей способности дифрактометра.

На рис. 11.4.1 показана геометрия расположения узлов дифрактометра с изогнутым монокристаллом в качестве монохроматора. Если образец имеет небольшие размеры, то фокусировка позволяет в несколько раз увеличить число попадающих на него нейтронов по сравнению с плоским монохроматором. Как выглядит современный многоэлементный фокусирующий монохроматор, изготовленный из пластин пластически деформированных монокристаллов германия, показано на рис. 11.4.1. Деформация используется для формирования некоторой степени мозаичности (на уровне  $10 - 20$  угл. мин.), что заметно увеличивает отражающую способность исходно почти идеальных монокристаллов Ge.

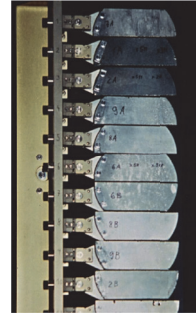
Каждый из многочисленных вариантов конструкции как многоэлементных, так и изогнутых монохроматоров обладает некоторым набором достоинств и недостатков и, соответственно, используются на дифрактометрах с какой-то определенной специализацией. Например, фокусирующие Si-монохроматоры с

глубоким минимумом в функции разрешения при некотором угле рассеяния нашли применение в дифракционном анализе внутренних напряжений в объемных материалах [Mikula et al., 1994]. Поскольку характерные размеры наблюдаемых в этом случае областей составляют около 1 мм, то можно, сохраняя разрешение, почти на порядок повысить интенсивность дифракционного пика. Большие Ge-монохроматоры с вертикальной фокусировкой используются на структурных дифрактометрах высокого разрешения, т.к. с их помощью удастся получить функцию разрешения с широким минимумом в области больших углов рассеяния.

а)



б)



**Рис. 11.4.1.** Слева: Иллюстрация фокусировки в реальном пространстве с помощью равномерно изогнутого монохроматора. Справа: Монохроматор дифрактометра HRPT, состоящий из 11 пластинок Ge, каждая площадью  $7 \times 2.5 \text{ см}^2$  и толщиной 0.96 см. Пластины слегка развернуты вокруг горизонтальной оси для создания эффекта фокусировки [Fischer et al., 2000].

При компактном расположении спектрометров вблизи реактора используются двухкристальные (двойные) монохроматоры. Если такой монохроматор состоит из кристаллов с отражением от близких по величине  $d_{hkl}$  плоскостей, то направление образовавшегося монохроматического пучка близко к направлению первичного пучка. Эта схема позволяет изменять длину волны нейтронов, почти не смещая место расположения образца, и, кроме того, уменьшить фон быстрых нейтронов и гамма излучения. Примером использования двойного монохроматора является дифрактометр для анализа внутренних напряжений в массивных изделиях, расположенный на реакторе ИР-8 в НИЦ КИ [Эм и др., 2017].

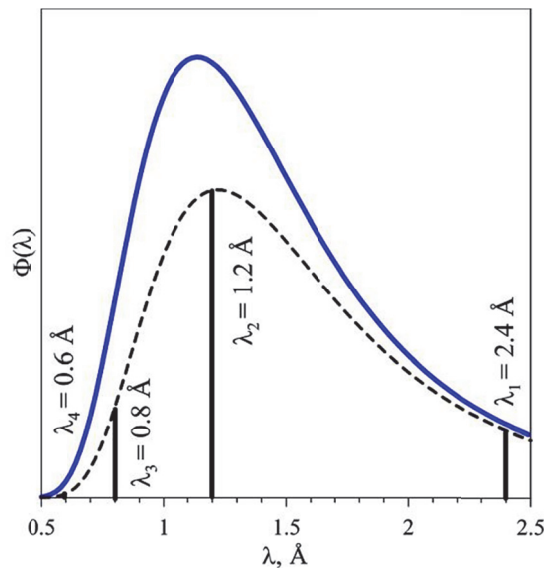
Рассмотрим некоторые специфические детали процесса монохроматизации. При падении на монокристалл нейтронов со сплошным максвелловским распределением по энергии от выбранной кристаллографической плоскости в зеркальном направлении будут отражены нейтроны с длинами волн, которые удовлетворяют уравнению Брэгга-Вульфа:

$$\lambda_n = 2(d_{hkl}/n) \cdot \sin \theta_m, \quad (11.4.1)$$

где  $\theta_m$  – угол Брэгга (угол между направлением первичного пучка и кристаллографической плоскостью монохроматора),  $d_{hkl}$  – межплоскостное расстояние для выбранной кристаллографической плоскости. Например, для кристалла кубической сингонии

$$d_{hkl} = a/(h^2 + k^2 + l^2)^{1/2}, \quad (11.4.2)$$

где  $a$  – параметр элементарной ячейки,  $h, k, l$  – индексы Миллера. Дифракционные пики с  $\lambda_n = \lambda_1/n$ ,  $n = 1, 2, 3$  и т.д. называются порядками отражения. Их интенсивность зависит от структурного фактора,  $F_{hkl}$ , и модулируется максвелловским распределением. Рассмотрим конкретный пример формирования монохроматического пучка с помощью монокристалла меди с  $a = 3.615 \text{ \AA}$ . Медь имеет гранцентрированную кубическую (ГЦК) элементарную ячейку, соответственно, разрешенными являются дифракционные пики со всеми четными или всеми нечетными индексами Миллера. При настройке монокристалла на отражение от плоскости 111 и при угле Брэгга  $\theta_m = 35.1^\circ$  получаем, что  $\lambda_1 = 2.4 \text{ \AA}$ , а порядки отражения возникнут при  $\lambda_n = 1.2, 0.8, 0.6 \text{ \AA}$  для  $n = 2, 3, 4$ . Их интенсивности будут пропорциональны максвелловскому спектральному распределению  $\Phi(\lambda)$  и тепловому фактору, который можно представить в виде  $T(n) = \exp(-B \cdot n^2/4d_1^2)$ , где  $B \approx 0.5 \text{ \AA}^2$  – тепловой параметр,  $d_1$  – межплоскостное расстояние для 1-го порядка отражения (рис. 11.4.2).



**Рис. 11.4.2.** Модуляция максвелловским распределением и тепловым фактором интенсивностей порядков отражения с  $\lambda = \lambda_n$  от плоскости 111 монокристалла меди. Сплошной линией показано максвелловское распределение, пунктирной – уменьшение интенсивности порядков отражения из-за теплового фактора.

При дифракции на кристалле, являющимся образцом для исследования, порядки отражения от монохроматора приведут для каждого межплоскостного расстояния  $d_{hkl}$  к образованию дифракционных пиков на нескольких (в рассматриваемом примере на четырех) разных углах Брэгга:  $\sin \theta_n = \lambda_n / (2d_{hkl})$  с интенсивностями, пропорциональными показанным на рис. 11.4.2 линиям. Очевидно, что анализ такого многокомпонентного спектра не является простым и необходимо предпринять какие-то меры для устранения или минимизации вклада порядков отражения в результирующий дифракционный спектр. Одним из вариантов является выбор  $\theta_m$  так, чтобы первому порядку отражения соответствовала длина волны  $\lambda_1$  в области максимума максвелловского спектра. Для рассмотренного примера с плоскостью 111 следует использовать  $\theta_m \approx 16^\circ$ , что приведет к  $\lambda_1 = 1.15 \text{ \AA}$  и  $\lambda_2 = 0.57 \text{ \AA}$ . Остальные порядки отражения в этом случае практически уже не будут видны. Аналогичная ситуация возникнет, если выбрать отражающую плоскость с достаточно малым  $d_{hkl}$ .

Другим вариантом минимизации влияния порядков отражения является выбор в качестве монохроматора кристалла с более сложной структурой, чем у простых металлов. Например, для германия или кремния можно найти такие плоскости, у которых 2-й порядок отражения является запрещенным. Действительно, в этих структурах для плоскостей  $hhl$  структурный фактор,  $F_{hkl}$ , отличен от нуля, если все индексы нечетные или если  $2h + l = 4n$ . Соответственно, для плоскостей 111, 113 и т.д. 2-е порядки отражения отсутствуют, т.к.  $F_{222}$ ,  $F_{226}$  и т.д. равны нулю.

Спектральный интервал длин волн, отраженных от монохроматора, может быть определен из уравнения Брэгга-Вульфа, дифференцирование которого приводит к соотношению:

$$\Delta\lambda/\lambda = \Delta\theta_m/\operatorname{tg} \theta_m, \quad (11.4.3)$$

где  $\Delta\lambda$  – ширина полосы длин волн,  $\Delta\theta_m$  – угловая неопределенность в процессе формирования монохроматором пучка нейтронов. В величине  $\Delta\theta_m$  необходимо учесть угловую расходимость первичного пучка и мозаичность монохроматора. Первая из этих величин задается коллиматором (обычно соллеровским) перед монохроматором, вторая определяется технологией выращивания и последующей обработкой кристалла-монохроматора. В частности, существуют специальные методики, позволяющие увеличить до необходимой величины мозаичность монокристаллов германия, которые исходно вырастают почти совершенными.

Для оценки характерных величин можно предположить гауссовы распределения для угла падения пучка на монохроматор (с полной шириной  $\gamma$ ) и мозаичности монохроматора (с полной шириной  $\eta$ ). В этом случае также функцией Гаусса аппроксимируются распределения для  $\Delta\lambda/\lambda$  и угловой неопределенности отраженного от монохроматора пучка, причем полные ширины этих распределений определяются из:

$$\Delta\lambda/\lambda = (\gamma^2 + \eta^2)^{1/2} \quad \text{и} \quad \Delta\varphi = (\gamma^2 + 4\eta^2)^{1/2}. \quad (11.4.4)$$

Для дифрактометров высокого разрешения, например, HRPT (PSI, Швейцария) типичные значения величин, входящих в эти формулы, составляют:  $\gamma = 12' = 0.0035$  рад,  $\eta = 15' = 0.0044$  рад и, соответственно,  $\Delta\lambda/\lambda \approx 0.006$ ,  $\Delta\varphi \approx 0.54^\circ$ . После монохроматора устанавливаются еще один коллиматор или система щелей, которые окончательно формируют пучок нейтронов на образце. Оптимальный выбор параметров, определяющих размер и расходимость пучка нейтронов на образце, факторы, влияющие на отражательную способность монохроматоров, и характеристики некоторых веществ, подходящих для изготовления монохроматоров подробно рассмотрены в монографии [Нозик и др., 1979].

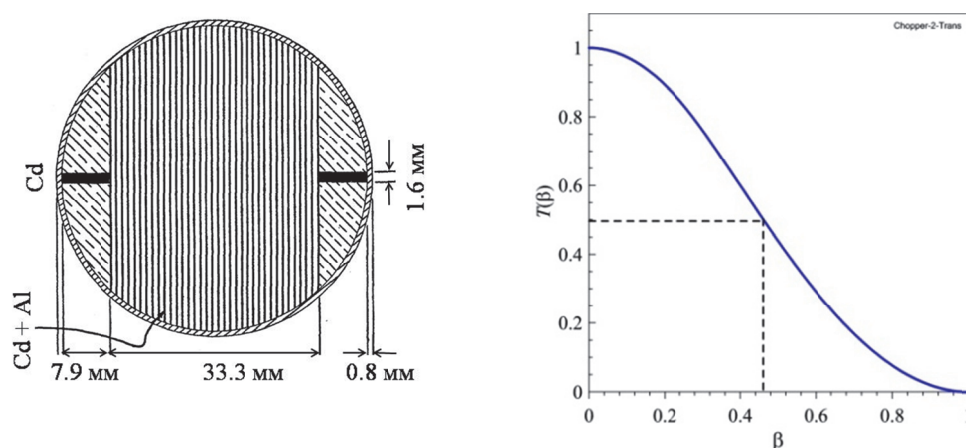
### § 11.5. Механические прерыватели

Термином «*прерыватель пучка нейтронов*» обозначают несколько типов устройств, различающихся как по назначению, так и по конструкции. Общим у них является то, что все они состоят из прозрачных и непрозрачных для нейтронов частей и вращаются с какой-то постоянной или переменной скоростью. В частности, прерыватели используются для формирования нейтронных импульсов, как селекторы скорости нейтронов (т.е. как монохроматоры), для выведения из пучка фоновых и рециклических нейтронов, для сокращения нейтронных импульсов на источниках с длинным импульсом и т.д.

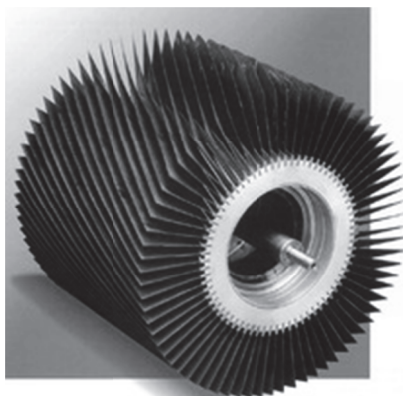
Простейший прерыватель формирователь импульсов состоит из вращающегося с угловой скоростью  $\omega$  непрозрачного для нейтронов диска с радиусом  $R$ , на периферии которого есть узкое окно (щель) с шириной  $d$ . Если на него падает коллимированный нейтронный пучок с такой же шириной, то с периодом  $T = 2\pi/\omega$  формируются импульсы треугольной формы с шириной на половине высоты  $\Delta t = d \cdot T / (2\pi R)$ . При частоте вращения 100 об/с, ширине щели  $d = 0.5$  см и радиусе  $R = 25$  см образуются импульсы шириной  $\Delta t \approx 32$  мкс, следующие с частотой 100 Гц.

Селектор скоростей можно выполнить из двух формирователей импульсов, поставив их на некотором расстоянии  $L$  друг от друга и сфазировав их вращение. При максвелловском распределении нейтронов по скоростям после 1-го прерывателя к моменту открытия пучка 2-м прерывателем долетят нейтроны со скоростью  $v = L/t$ , где  $t$  – сдвиг по времени между открытием пучка 1-м и 2-м прерывателями,  $L$  – расстояние между ними. При  $L \approx 5$  м удастся обеспечить относительную неопределенность скорости на уровне  $\Delta v/v \sim 1\%$ . Для уменьшения этой величины устанавливают несколько дисковых прерывателей друг за другом и фазируют их соответствующим образом.

Другим вариантом селектора скоростей является предложенный Э.Ферми еще в 1947 году роторный прерыватель пучка (часто называемый «прерыватель Ферми»). Его принцип действия полностью аналогичен действию селектора из двух формирователей импульсов, роль которых выполняют входное и выходное окна прерывателя. Для уменьшения неопределенности скорости прошедших нейтронов окно в роторе выполняется в виде соллеровского коллиматора (рис. 11.5.1). Достаточно малую величину неопределенности в скорости прошедших нейтронов обеспечивают большая скорость вращения (до  $15 \cdot 10^3$  об/мин) ротора и малая ширина прозрачных для нейтронов щелей (0.8 мм). Функция пропускания такого селектора скоростей показана на рис. 11.5.1 в зависимости от параметра  $\beta = \omega R^2 / (d \cdot v)$ , где  $\omega$  – угловая скорость вращения,  $R$  – радиус ротора,  $d$  – ширина щели,  $v$  – скорость нейтронов.



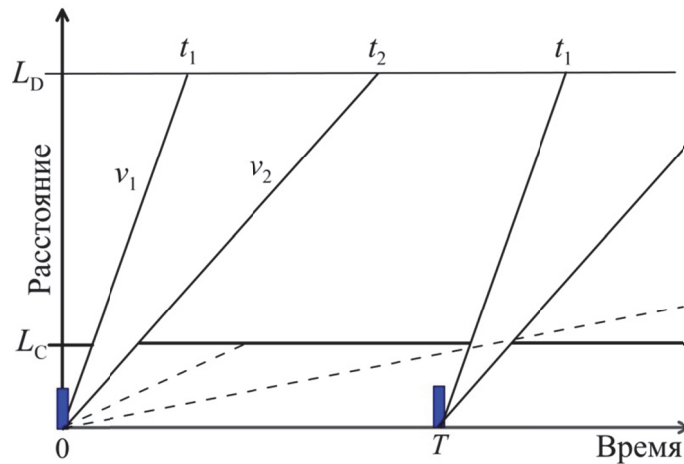
**Рис. 11.5.1.** Слева: Поперечное сечение селектора скоростей Ферми. В алюминиевый корпус (внешняя стенка – стальная,  $\varnothing = 5$  см) помещен сэндвич из пластинок Al (0.8 мм) и Cd (0.15 мм). В полностью открытой позиции нейтроны проходят сквозь ротор в диапазоне углов  $\pm 1.2^\circ$ . Справа: Функция пропускания селектора скоростей Ферми.



**Рис. 11.5.2.** Селектор скоростей нейтронов со спиральной конфигурацией щелей.

Усовершенствованием такого типа селекторов стало предложение заменить прямолинейные щели коллиматора на спиральные (рис. 11.5.2), что позволило увеличить пропускание прерывателя и улучшить разрешение по скорости. Прерыватели такого типа часто используются на спектрометрах малоуглового рассеяния на стационарных реакторах. Подробное описание различных типов селекторов скоростей и примеры расчета их функции пропускания содержатся в монографии [Турчин, 1963].

Еще одной задачей, решаемой с помощью прерывателей на импульсных источниках нейтронов, является подавление фона быстрых и рециклических нейтронов между импульсами. Как правило, для этого используется дисковый прерыватель с широким секторным окном и с частотой вращения равной или кратной частоте импульсов источника. Соответствующая диаграмма для спектрометра упругого рассеяния, в этом случае  $L = v \cdot t$ , приведена на рис. 11.5.3, где на оси времени показаны положения импульсов источника, а на оси расстояний – положения прерывателя и детектора.



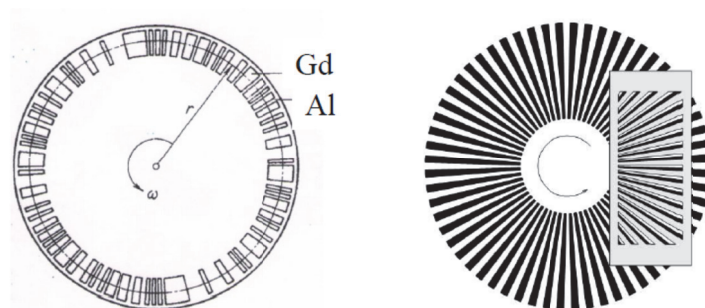
**Рис. 11.5.3.** Диаграмма время-расстояние для спектрометра упругого рассеяния на импульсном источнике нейтронов:  $T$  – период повторения импульсов,  $L_C$  и  $L_D$  – расстояния от источника до фонового прерывателя и до детектора. Прерыватель пропускает нейтроны со скоростями от  $v_1$  до  $v_2$  ( $v_1 > v_2$ ), время пролета которых до детектора составляет  $t_1$  и  $t_2$ . Пунктирными линиями показаны возможные пути рециклических нейтронов.

В идеальном варианте прерыватель должен пропускать только нейтроны со скоростями в заданном интервале, однако, для пучка конечной ширины и сравнительно малой скорости вращения прерывателя в его функции пропускания формируются переходные области, с пропусканием, линейно изменяющимся от 0 до 1. При необходимости, для лучшей фильтрации фоновых нейтронов используются два фоновых прерывателя, сфазированных соответствующим образом. Такая же схема применяется на импульсных источниках с большой



частотой повторения импульсов для расширения рабочего диапазона длин волн. Например, на источнике ISIS (Великобритания), работающего на частоте 50 Гц, для дифрактометра HRPD с пролетным расстоянием  $L \approx 100$  м диапазон длин волн без перекрытия составляет  $\Delta\lambda \approx 0.8$  Å. Для его увеличения до приемлемой величины  $\sim 4$  Å с помощью фоновых прерывателей убираются 4 импульса из 5.

На импульсных источниках с длинным импульсом улучшения разрешающей способности по времени пролета можно добиться с помощью быстрого прерывателя дискового типа. В простейшем варианте для получения узкого импульса из широкого используется прерыватель с одной узкой щелью со скоростью вращения диска до 20,000 об/мин. При этом, интервал между последовательными импульсами получается слишком коротким, и для его расширения несколько импульсов убираются с помощью дополнительных прерывателей. В целом, образуется довольно сложная конструкция, включающая несколько синхронизированных друг с другом прерывателей, специальные нейтроноды для формирования узкого пучка нейтронов и специальные схемы накопления данных.



**Рис. 11.5.4.** Схематическое изображение дисков статистического (слева) и фурье (справа) прерывателей. Диск изготавливается из прозрачного для нейтронов материала (Al-сплав), непрозрачные промежутки заполняются материалом, сильно поглощающим тепловые нейтроны (Gd или Cd). На диске статистического прерывателя расположение и ширина прозрачных промежутков выбираются случайным образом. На диске («роторе») фурье-прерывателя их ширина одинакова, а расположение эквидистантно. В случае фурье-прерывателя используется неподвижный «статор» с такой же, как на роторе конфигурацией щелей, что дает возможность использовать пучок большой площади.

Альтернативными вариантами сокращения импульса до приемлемой ширины являются методы корреляционного анализа, появившиеся в середине 1960-х годов. В одном из них для модуляции интенсивности нейтронного пучка используется многощелевой диск со случайным расположением и нерегулярной шириной щелей (*статистический прерыватель*), а в другом – многощелевой диск с регулярным расположением и одинаковой шириной щелей (*фурье-прерыватель*) (рис. 11.5.4). Большое количество щелей в этих двух типах прерывателей позволяет резко увеличить их пропускание (например, пропускание

фурье-прерывателя составляет 25% вместо ~0.5% для однощелевого прерывателя). Однако, большое количество щелей и, соответственно, сильное перекрытие спектров от соседних импульсов, требует специфических – корреляционных – методов восстановления спектра рассеянных нейтронов.

Для любого типа быстрого прерывателя зависимость интенсивности нейтронов, рассеянных на кристалле и попавших в детектор, от времени,  $t$ , и частоты вращения прерывателя,  $\omega$ , можно выразить формулой:

$$I(\omega, t) \sim \int \sigma(\tau) \cdot T[(\tau - t), \omega] d\tau, \quad (11.5.1)$$

где  $\sigma$  – упругое сечение рассеяния нейтронов кристаллом,  $t$  – время пролета между прерывателем и детектором, которое легко связать с энергией нейтрона, переданным импульсом или межплоскостным расстоянием,  $T(t, \omega)$  – пропускание прерывателя при частоте вращения  $\omega$ , которое определяется конструкцией прерывателя. Задачей восстановления спектра является подбор такой  $T(t, \omega)$ , чтобы можно было определить сечение рассеяния  $\sigma(t)$ , которое, например, в случае упругого рассеяния на кристалле представляет собой набор узких брэгговских пиков.

Для однощелевого прерывателя, вращающегося на большой фиксированной частоте,  $T(t, \omega) \sim \delta(t)$  и из (11.5.1) следует, что  $I(t) \sim \sigma(t)$ . Т.е. реализуется обычный метод времени пролета и единственная проблема, которую надо решить, – перекрытие спектров от соседних импульсов.

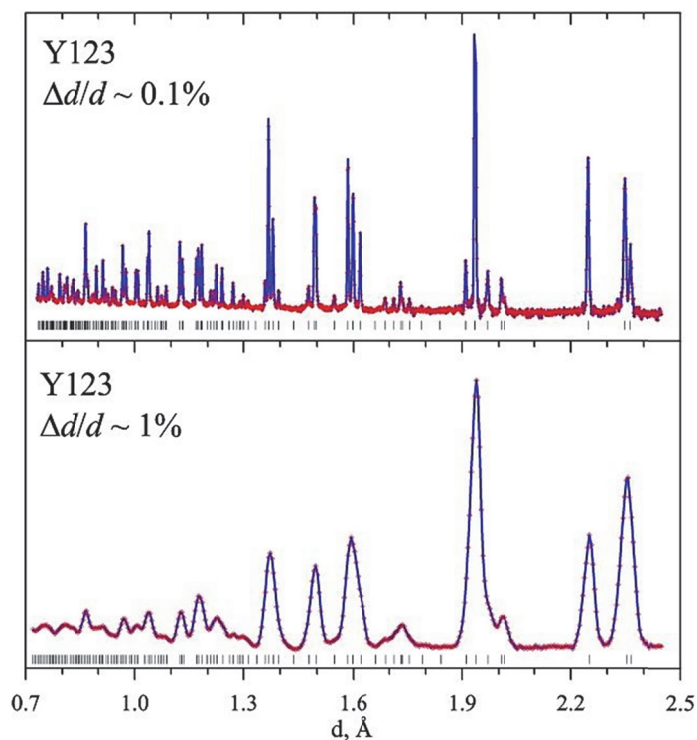
Для статистического прерывателя, который также вращается на большой и фиксированной частоте, в качестве  $T(t, \omega)$  подбирается случайная функция, такая, что  $\int T(t - t') \cdot T(t' - \tau) dt' \sim \delta(t - \tau)$ , т.е. автокорреляционная функция должна быть максимально острой. В этом случае свертка  $I(\omega, t)$  с  $T(t, \omega)$  позволяет определить  $\sigma(t)$ . Поскольку  $T(t, \omega)$  не может быть истинно случайной (хотя бы потому, что она повторяется с периодом вращения), то этот метод принято называть псевдослучайным.

Наконец, фурье-прерыватель имеет периодическую (пилообразную) функцию пропускания, которую в первом приближении можно считать синусоидой. Соответственно, при фиксированной частоте вращения прерывателя интенсивность рассеянных нейтронов представляет собой фурье-гармонику сечения рассеяния, а именно,  $I(\omega) \sim \int \sigma(\tau) \cdot \sin(\omega\tau) d\tau$ . Измеряя  $I(\omega)$  в широком диапазоне частот, можно восстановить фурье-образ, т.е. получить сечение рассеяния  $\sigma(t)$ .

На практике рассмотренные выражения для  $T(t, \omega)$  являются в значительной степени приближенными и определение точной зависимости  $\sigma(t)$  сталкивается с различного рода ограничениями. Для однощелевого прерывателя это, прежде всего, конечная ширина функции пропускания, напрямую влияющая на разрешающую способность и светосилу дифрактометра. Среди проблем использования статистического прерывателя одна из главных заключается в

ограничении на величину сечения первичного нейтронного пучка, что приводит к необходимости работы с малыми по объему образцами. Функция пропускания фурье-прерывателя не может быть чисто синусоидальной, хотя бы потому, что модуляция интенсивности возможна только в пределах от нуля до единицы.

Подробное описание принципов работы со статистическим прерывателем и примеры его использования приведены в книге [Александров и др., 1981]. Реальные эксперименты ведутся, например, на спектрометре POLDI (Pulse-OverLap DIffractometer) [Stuhr, 2005] на источнике SINQ (PSI), который в основном предназначен для исследований внутренних напряжений в материалах с простой структурой (металлах). Прерыватель на POLDI представляет собой быстро вращающийся диск, с 32 щелями разной ширины. При пролетном расстоянии около 14 м между прерывателем и детектором и эффективной ширине импульса 8 мкс (при 15000 об/мин) временной вклад в функцию разрешения составляет  $\sim 8.6 \cdot 10^{-4}$ , что вполне достаточно для регистрации малых сдвигов дифракционных пиков под влиянием внутренних напряжений.



**Рис. 11.5.5.** Сравнение дифракционных картин от порошка  $\text{YBa}_2(\text{Cu,Fe})_3\text{O}_{6.3}$ , измеренных на HRFD с обычным для дифрактометра на ИБР-2 разрешением (внизу), и в режиме высокого разрешения. Штрихами обозначены расчетные положения дифракционных пиков.

Первые в мире реально работающие фурье-дифрактометры были созданы в России, сначала mini-SFINKS на стационарном реакторе ВВР-М (ПИЯФ, Гатчина) [Niimaki et al., 1985], а затем HRFD на импульсном источнике нейтронов ИБР-2 (ОИЯИ, Дубна) [Aksenov et al., 1997]. Особенно успешным оказался дифрактометр HRFD (High-Resolution-Fourier-Diffractometer), реализованный в Дубне коллаборацией ОИЯИ (Дубна), ПИЯФ (Гатчина) и VTT (Espoo, Finland), который начал стационарно действовать с 1994 года. Диск его фурье-прерывателя имеет диаметр 54 см, содержит 1024 прозрачных для нейтронов промежутка шириной (в середине) 0.7 мм и может вращаться со скоростью до 6000 об/мин. В отличие от однощелевого и статистического прерывателей, с фурье-прерывателем производится сканирование по частоте вращения от нулевой до максимальной скорости, что необходимо для измерения всех фурье-гармоник сечения рассеяния вплоть до частот  $\sim 10^5$  Гц. Эффективная ширина импульса при этом составляет около 10 мкс и дает временной вклад в функцию разрешения  $\sim 5 \cdot 10^{-4}$  (при пролетном расстоянии 20 м и  $\lambda = 2 \text{ \AA}$ ). Эффект сокращения ширины импульса на дифрактометре HRFD (реактор ИБР-2) показан на рис. 11.5.5, где сравниваются дифракционные спектры, измеренные на HRFD в режимах высокого (с прерывателем) и среднего (без прерывателя) разрешения.

Статистический и Фурье прерыватели могут использоваться как на стационарных, так и на импульсных источниках нейтронов. Практика, однако, показала, что в первом случае уровень так называемого «корреляционного» фона слишком велик для получения спектров рассеяния высокого качества. Для HRFD его многократное уменьшение обеспечивается дополнительным анализом корреляций сигналов детектора с импульсом мощности источника [Балагуров и др., 2015].

### § 11.6. Кристаллические фильтры

Поли- и монокристаллические фильтры используются для формирования пучков холодных нейтронов ( $E \sim 0.005$  эВ и меньше), как анализаторы энергии в спектрометрах неупругого рассеяния и для очистки пучка от быстрых нейтронов и  $\gamma$ -квантов. Действие поликристаллического фильтра основано на резком изменении полного сечения взаимодействия нейтрона с кристаллическим веществом при больших длинах волн. В полное сечение взаимодействия вносят вклад процессы когерентного брэгговского рассеяния,  $\sigma_B$ , неупругого рассеяния (когерентного и некогерентного),  $\sigma_{in}$ , и поглощения,  $\sigma_a$ , но при  $\lambda > \lambda_B = 2d_m$ , где  $d_m$  – максимально возможное межплоскостное расстояние с неравным нулю структурным фактором,  $\sigma_B = 0$ , т.е. можно написать:

$$\sigma_{tot} = \sigma_B + \sigma_{in} + \sigma_a, \text{ при } \lambda \leq \lambda_B, \quad \sigma_{tot} = \sigma_{in} + \sigma_a, \text{ при } \lambda > \lambda_B, \quad (11.6.1)$$

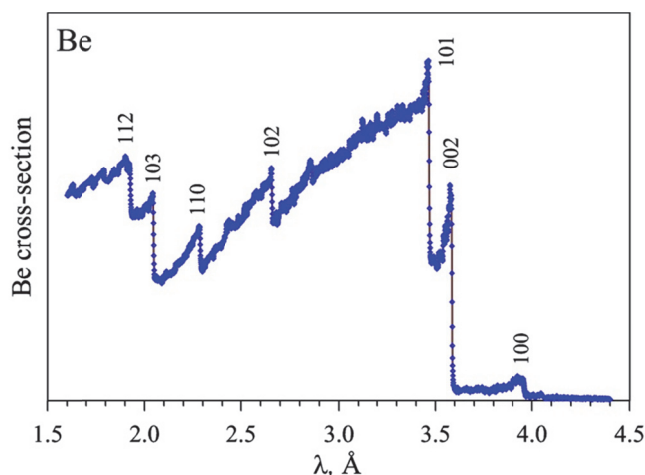
Соответственно, при пропускании пучка сквозь достаточно толстый слой

кристаллического вещества с большим  $\sigma_B$  и малыми  $\sigma_{in}$  и  $\sigma_a$ , в нем останутся только нейтроны с  $E < 0.082/\lambda_B^2$ , где  $E$  – в эВ,  $\lambda_B$  – в Å. Например, для бериллия, охлажденного до 100 К (для уменьшения  $\sigma_{in}$ ), полное сечение уменьшается с 1.3 b при  $\lambda \approx 3.4$  Å до 0.05 b при  $\lambda > 3.95$  Å, т.е. в 26 раз. Поскольку ослабление пучка при пропускании происходит по экспоненциальному закону:

$$I = I_0 \cdot \exp(-n \cdot \sigma_{tot} \cdot t), \quad (11.6.2)$$

где  $I_0$  и  $I$  – интенсивность пучка до и после фильтра,  $n$  – число ядер в  $\text{см}^3$ ,  $t$  – толщина фильтра, то эффект скачкообразного уменьшения  $\sigma_{tot}$  очень велик.

Стандартными веществами для изготовления поликристаллических фильтров являются Be (рис. 11.6.1), BeO, графит и алмазный порошок, для которых граничные длины волн достаточно велики ( $\sim 4$  Å и больше), а поглощение мало. Для уменьшения сечения неупругого рассеяния Be и BeO, как правило, охлаждают до азотной температуры. Вследствие очень высокой температуры Дебая алмаза ( $\theta_D \approx 1900$  К) процессы неупругого рассеяния в нем слабы уже при комнатной температуре и алмазный фильтр используют без охлаждения.



**Рис. 11.6.1.** Вид сечения взаимодействия нейтронов с бериллием (в произвольных единицах) в зависимости от длины волны. Указаны индексы Миллера кристаллографических плоскостей, ответственных за брэгговские скачки.

Фильтр из поликристаллического Be наиболее часто применяется в спектрометрах неупругого рассеяния на импульсных источниках нейтронов, действующих по схеме «обратной геометрии», в которой фильтр ставится после образца, перед детектором. В этой схеме предполагается, что нейтроны, прошедшие через фильтр фактически имеют нулевую энергию, т.е. изучаются

процессы неупругого рассеяния со сбросом энергии от некоторой конечной  $E_0$  до нуля. Для уменьшения неопределенности в переданной энергии иногда используется «окошечный фильтр», в котором пучок сначала фильтруется, например, бериллием, а затем рассеивается в детектор веществом с большей  $\lambda_B$ , например, BeO.

Применение монокристаллического фильтра для очистки пучка от быстрых нейтронов основано на том, что для них основным процессом взаимодействия с веществом является неупругое рассеяние, в результате которого они практически полностью выбывают из пучка. Тепловые нейтроны также будут выбывать из пучка, но их ослабление можно сделать незначительным, подбирая соответствующие кристаллы и правильно ориентируя их относительно пучка. Наиболее подходящими для фильтрации быстрых нейтронов являются монокристаллы висмута и сапфира ( $Al_2O_3$ ), пропускание которых для тепловых нейтронов составляет около 80% и 70%, соответственно. Висмут, как тяжелый элемент, кроме того, заметно лучше (примерно в 10 раз) фильтрует  $\gamma$ -кванты чем сапфир, поэтому на источниках большим вкладом  $\gamma$ -квантов в пучке его применение предпочтительно.

Подробное описание особенностей применения кристаллических фильтров и примеры их использования можно найти в сборнике [Игелстафф, 1970].

## § 11.7. Поляризаторы и анализаторы поляризации

### 11.7.1. Поляризация нейтронов

Общее рассмотрение процессов, позволяющих сформировать пучок поляризованных нейтронов, проведено в Главе 7. Здесь будут рассмотрены только их некоторые технические аспекты.

Наличие у нейтрона спина  $s = \hbar/2$  (или  $s = 1/2$  в единицах  $\hbar$ ) определяет возможность двух его ориентаций на выделенное направление, например, на направление магнитного поля. Если число нейтронов с параллельной,  $n_+$ , и антипараллельной,  $n_-$ , ориентацией спинов одинаково, т.е. если  $n_+ = n_-$ , то пучок называется неполяризованным. Если же  $n_+ \neq n_-$ , то пучок частично или полностью поляризован. Степень поляризации (не путать с вектором поляризации, § 7.1) характеризуется величиной

$$P = (n_+ - n_-)/(n_+ + n_-), \quad (11.7.1)$$

изменяющейся в пределах  $-1 \leq P \leq +1$ . Устройства, позволяющие формировать пучки с  $P \neq 0$ , называются *поляризаторами*, а с помощью анализаторов поляризации определяется величина  $P$ . Магнитный момент нейтрона,  $\mu_n = -1.913 \mu_N$ , где  $\mu_N = e\hbar/2m_p c$  – ядерный магнетон,  $m_p$  – масса протона, имеет отрицательный знак, т.е. направлен противоположно спину, и также как для спина, для него возможны две ориентации на выделенное направление.

Потенциал взаимодействия нейтрона со средой различен для различной ориентации его спина по отношению к спину ядра или для различной ориентации его магнитного момента по отношению к магнитному моменту атома. Эти различия и используются для приготовления пучков поляризованных нейтронов и для анализа степени поляризации.

Первые пучки поляризованных нейтронов были получены методом пропускания через намагниченное до насыщения железо в конце 1930-х годов, т.е. еще до создания ядерных реакторов. Для этого случая дифференциальное сечение рассеяния может быть записано как:

$$d\sigma/d\Omega \sim (b_n \pm b_m)^2 = b_n^2 + b_m^2 \pm 2b_n \cdot b_m, \quad (11.7.2)$$

где  $b_n$  и  $b_m$  – когерентные ядерная и магнитная длины рассеяния железа. Очевидно, что сечения рассеяния для двух возможных ориентаций магнитного момента нейтрона относительно направления намагничивания железа различаются на  $4b_n \cdot b_m$ . Различие между  $(d\sigma/d\Omega)_+$  и  $(d\sigma/d\Omega)_-$  было действительно зарегистрировано [Hoffman et al., 1937], что послужило первым прямым доказательством наличия у нейтрона магнитного момента. Однако, этот метод не был достаточно эффективным для поляризации нейтронов, т.к. ее степень не превышала 0.6 и, кроме того, интенсивность прошедшего пучка была мала. Поэтому в настоящее время основными методами создания пучка поляризованных нейтронов являются:

- дифракция на монокристалле с ферромагнитной структурой,
- отражение от намагниченного зеркала или пропускание через него,
- пропускание через фильтр, состоящий из поляризованных ядер.

Все они основаны на эффекте неравенства сечений  $(d\sigma/d\Omega)_+$  и  $(d\sigma/d\Omega)_-$ , но природа неравенства в этих методах различна.

При брэгговской дифракции нейтронов на ферромагнитном кристалле для интенсивности дифракционного пика с индексами Миллера ( $hkl$ ) можно написать соотношение, аналогичное формуле (11.7.2):

$$I_{hkl} \sim |F_{hkl, n} \pm F_{hkl, m}|^2, \quad (11.7.3)$$

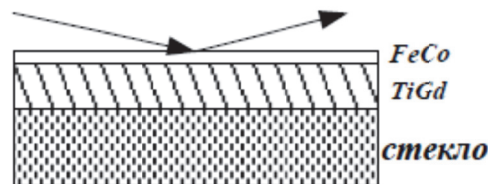
в котором вместо длин рассеяния стоят ядерный и магнитный структурные факторы. Величина  $F_{hkl, m}$  зависит от положения атомов, обладающих магнитным моментом, в элементарной ячейке кристалла, от вектора рассеяния (через магнитный формфактор) и от взаимной ориентации магнитных моментов атомов  $\vec{m}$  и вектора рассеяния  $\vec{q}$  (см. (7.3.2)). В частности, если  $\vec{m} \parallel \vec{q}$ , то магнитная дифракция отсутствует, а при  $\vec{m} \perp \vec{q}$  магнитное когерентное рассеяние максимально. Отсюда следует возможность регулирования величины магнитной амплитуды рассеяния от нуля до некоторого максимального значения, изменяя относительную ориентацию векторов  $\vec{m}$  и  $\vec{q}$  и подбирая угол Брэгга отражения

от кристалла. Таким образом, если добиться равенства абсолютных величин ядерного и магнитного структурных факторов, то в отраженном пучке будет присутствовать только одна компонента спина нейтрона.

Действительно, уже в первых экспериментах с монокристаллами  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  и  $\text{Co}_{0.92}\text{Fe}_{0.08}$  [Nathans et al., 1959] была получена степень поляризации вплоть до 0.99. Кроме этих, на практике используются кристаллы  $\text{Cu}_2\text{MnAl}$  и  $\text{Fe}_3\text{Si}$ , с помощью которых получают более интенсивные пучки монохроматических поляризованных нейтронов в тепловой области спектра нейтронов. Однако именно монохроматичность отраженных от кристалла нейтронов является существенным недостатком этого метода.

Для получения пучка поляризованных нейтронов в широком интервале длин волн используется метод отражения от зеркала. В § 11.2 приведена формула (11.2.1), из которой следует наличие двух критических углов при отражении нейтронов от намагниченной среды (см. рис. 7.3.1). Поскольку для некоторых веществ абсолютные величины слагаемых в (11.2.1) сравнимы, то отражение компоненты пучка со спином направленным противоположно вектору  $\mathbf{B}$  может быть практически полностью исключено и, соответственно, отраженный пучок будет поляризован. Метод отражения от намагниченного зеркала особенно привлекателен для использования в спектрометрах по времени пролета, поскольку на них эксперименты всегда ведутся в широком интервале длин волн.

Одинокое зеркало может быть заменено на нейтронпровод, первые удачные результаты использования которого приведены в работе [Drabkin et al., 1976]. Эксперименты были проведены с нейтронпроводом длиной около 1.5 м и шириной канала 1.6 мм, стенки которого были покрыты слоем сплава Fe-Co, нанесенного на поглощающий слой TiGd (рис. 11.7.1). На выходе была получена средняя поляризация 0.95 – 0.97 (в зависимости от коллимации входного пучка) в диапазоне длин волн от 2 до 7 Å. Расширение этого диапазона, прежде всего в сторону меньших длин волн (до  $\sim 1.3$  Å), можно получить, используя многослойное аперидическое покрытие – «суперзеркальный поляризатор».



**Рис. 11.7.1.** Поперечное сечение поляризирующего зеркала на основе сплава Fe-Co. Нанесенный на стекло слой TiGd служит для поглощения нейтронов прошедших сквозь пленку Fe-Co.



Существенным недостатком поляризующих зеркал или нейтроноводов является малый угол захвата первичного пучка из-за чего его ширина также получается слишком малой, на уровне 2–3 мм. Этого достаточно для рефлектометров, но для дифрактометров и особенно для некоторых типов спектрометров неупругого рассеяния требуются более широкие и не столь хорошо коллимированные пучки. Проблема малой ширины пучка отсутствует в методе пропускания нейтронов через фильтр из поляризованных ядер, способ действия которого основан на различии в сечениях взаимодействия нейтрона с ядром при параллельной и антипараллельной ориентации их спинов. Как наиболее перспективные еще в начале 1960-х годов обсуждались мишени, содержащие водород и  $^3\text{He}$  [Таран, Шапиро, 1963], и впоследствии именно эти два варианта были реализованы.

Для случая прохождения неполяризованного пучка сквозь фильтр для поляризации прошедшего пучка вместо формулы (11.7.1) можно написать:

$$P = (T_+ - T_-)/(T_+ + T_-), \quad (11.7.4)$$

где  $T_{\pm}$  – коэффициенты пропускания нейтронов с двумя возможными ориентациями спина. При этом полное пропускание есть  $T = (T_+ + T_-)/2$ . Полное сечение взаимодействия нейтрона с ядром можно разбить на два слагаемых,  $\sigma = \sigma_0 \pm \sigma_p$ , где  $\sigma_0$  не зависит, а знак  $\sigma_p$  зависит от взаимной ориентации спинов нейтрона и поляризованных ядер. Пропускание связано с сечением взаимодействия стандартным образом (формула (11.6.2)) и для величин  $T$  и  $P$  в предположении полной поляризации ядер фильтра получаем:

$$T = \exp(-n \cdot \sigma_0 \cdot t) \cdot \text{ch}(n \cdot \sigma_p \cdot t), \quad (11.7.5)$$

$$P = [\exp(-n \cdot \sigma_p \cdot t) - \exp(n \cdot \sigma_p \cdot t)] / [\exp(-n \cdot \sigma_p \cdot t) + \exp(n \cdot \sigma_p \cdot t)] = -\text{th}(n \cdot \sigma_p \cdot t), \quad (11.7.6)$$

где  $\text{th}(x)$  и  $\text{ch}(x)$  – гиперболические тангенс и косинус. Отрицательный знак у тангенса означает, что в прошедшем пучке ориентация спинов нейтронов и поляризованных ядер фильтра противоположна.

Из этих формул следует, что поляризация пучка растет с увеличением толщины фильтра, но интенсивность прошедшего пучка уменьшается и для оценки качества фильтра вводится величина  $PT^{1/2}$ , имеющая максимум при некотором значении аргумента (рис. 11.7.2). Величину  $S = n \cdot \sigma_0 \cdot t = 0.0732 \cdot \lambda \cdot p \cdot t$ , где размерности длины волны нейтрона  $[\lambda] = \text{Å}$ , давления  $[p] = \text{бар}$ , толщины фильтра  $[t] = \text{см}$ , иногда называют коэффициентом непрозрачности фильтра.

С использованием водородной мишени этот метод поляризации пучка был успешно реализован на импульсном реакторе ИБР (ОИЯИ, Дубна) еще в 1960-х годах [Лушиков и др., 1969]. В качестве протонного фильтра использовался монокристалл лантан-магниевого нитрата (ЛМН,  $\text{La}_2\text{Mg}_2(\text{NO}_3)_{12} \cdot 24\text{H}_2\text{O}$  с

небольшой примесью Nd), в котором число атомов водорода в  $1 \text{ см}^3$  составляло  $3.9 \cdot 10^{22}$ . В кристалле ЛМН производилась динамическая поляризация протонов (до 70%) с использованием высокочастотного электромагнитного поля при температуре 1.1 К. Поскольку сечения синглетного и триплетного рассеяния нейтронов на протонах почти постоянны в области энергий от 1 до  $10^5$  эВ, то поляризация прошедшего пучка, достигавшая 65%, также была постоянна в этой области энергий. На спектрометре с протонным фильтром в ЛНФ ОИЯИ было выполнено большое число экспериментов в области ядерной физики, в частности, был сделан выбор истинного набора длин рассеяния нейтрона на дейтоне.

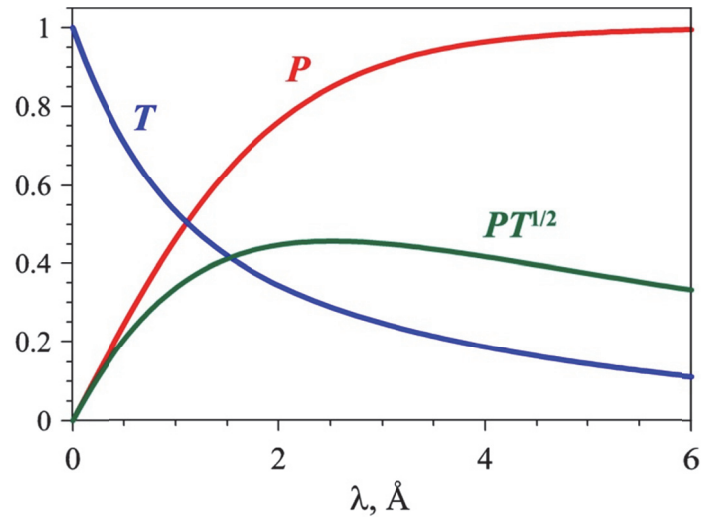


Рис. 11.7.2. Типичные зависимости пропускания ( $T$ ), поляризации ( $P$ ) и качества ( $PT^{1/2}$ ) фильтра от длины волны нейтрона для  $^3\text{He}$ -фильтра при значении параметра  $p \cdot t = 10$ .

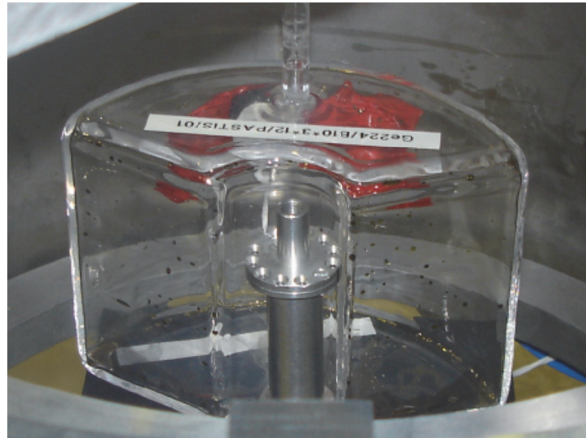


Рис. 11.7.3.  $^3\text{He}$ -фильтр, предназначенный для работы в широком интервале углов рассеяния на одном из спектрометров в ИЛЛ [Stewart et al., 2006].

Для получения поляризованного пучка тепловых нейтронов в настоящее время, в основном, используется фильтр, содержащий поляризованные ядра  $^3\text{He}$ . Он представляет собой стеклянную емкость с газом  $^3\text{He}$ , форма которой адаптируется к условиям на конкретном спектрометре (рис. 11.7.3). Рассеяние нейтронов на газе  $^3\text{He}$  почти изотропно и при постоянной длине прохождения нейтронов сквозь фильтр поляризация оказывается практически постоянной в широком интервале углов рассеяния. Одной из проблем  $^3\text{He}$ -фильтра является постепенное уменьшение поляризации ядер гелия со временем вследствие их столкновений со стенками контейнера и некоторыми другими причинами. Спад поляризации происходит по экспоненте с типичным значением постоянной времени около 100 часов.

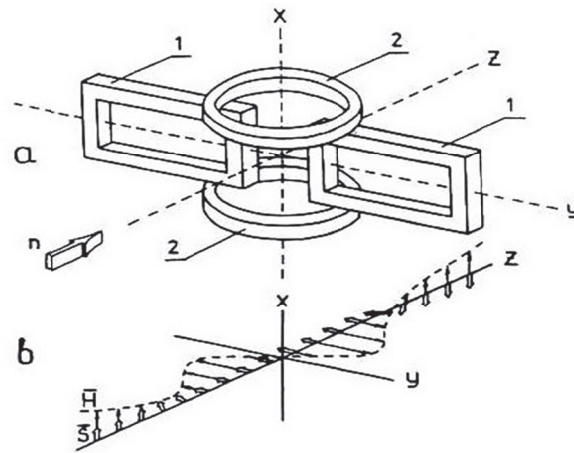
### 11.7.2. Управление поляризацией

При работе с поляризованными нейтронами в зависимости от типа эксперимента приходится изменять направление их векторов поляризации или транспортировать их в определенные области пространства с сохранением поляризации. Такие задачи решаются с помощью подобранных для каждого случая конфигураций магнитных полей на пути нейтронов. Для анализа поляризации пучка, полученного тем или иным образом, необходим второй поляризатор (анализатор), которым можно измерить число нейтронов со спином по (+) или против (-) поля поляризатора. Простым перемагничиванием анализатора такое измерение провести нельзя, поскольку анализатор находится в магнитном поле и вектор поляризации поворачивается вместе с ним. Нейтроны около анализатора поляризованы всегда вдоль его поля, поэтому анализатор фиксирует нейтроны с одной проекцией. Чтобы измерить число нейтронов с другой проекцией, надо изменить знак поляризации на противоположный. Тогда анализатор зафиксирует нейтроны, поляризованные против поля до переворота. Устройство для переворота спина нейтрона называют флиппером. В основе его работы лежит неадиабатическое включение магнитного поля (см. § 7.2.1), когда спин нейтрона не успевает реагировать на изменения окружающих полей. Дополнительным методом воздействия на спин нейтрона служит резонансное высокочастотное поле при  $\omega = \omega_L$  ( $\omega_L$  – ларморова частота), которое дает возможность повернуть спин нейтрона на заданный угол, как правило, на  $90^\circ$  или  $180^\circ$ . В настоящее время имеется большое количество конструкций спиновых флипперов [Williams, 1988; Никитенко и Сыромятников, 2013].

Впервые спин-флиппер был применен для измерения поляризации на реакторе в Оак Ридже [Stanford et al., 1954]. Резонансный флиппер был помещен между двумя намагниченными кристаллами магнетита. Первые эксперименты на реакторе по изучению поляризации рассеянных нейтронов были проведены в Брукхэйвене (США) [Nathans et al., 1959], где был сконструирован первый двухосный спектрометр поляризованных нейтронов. В качестве поляризатора – монохроматора использовался ферромагнитный кристалл, пучок поляризованных

нейтронов между монохроматором и образцом сопровождался ведущим полем от постоянных магнитов для сохранения поляризации, перед образцом располагался резонансный флиппер для переверота поляризации нейтронов в пучке. На образце было приложено магнитное поле для удержания намагниченности.

Конструкции флипперов (изменение знака поляризации) и ротаторов (поворот на произвольный угол) обычно признаются изобретениями и часто носят имя изобретателя. Так, известен спин-флиппер Драбкина [Драбкин и др., 1969], имеющий круговую симметрию и эффективный для пучков малого сечения ( $5 \times 5 \text{ мм}^2$ ). Спин-флиппер Мезеи [Mezei, 1972] рассчитан на монохроматический ( $\Delta\lambda/\lambda \sim 1\%$ ) пучок нейтронов и включает сложную комбинацию областей с адиабатической и неадиабатической прецессией спина нейтрона. Широкополосный ротатор, основанный на быстром адиабатическом прохождении нейтронами области смены знака поля и подходящий для нейтронов с  $E < 0.5 \text{ эВ}$ , был предложен в работе [Таран, 1975]. Для немонохроматического пучка, сформированного зеркальным нейтронотодом, эффективен спин-флиппер Корнеева [Корнеев, 1980]. Рассмотрим принцип действия этого флиппера, конструкция которого схематически показана на рис. 11.7.4.

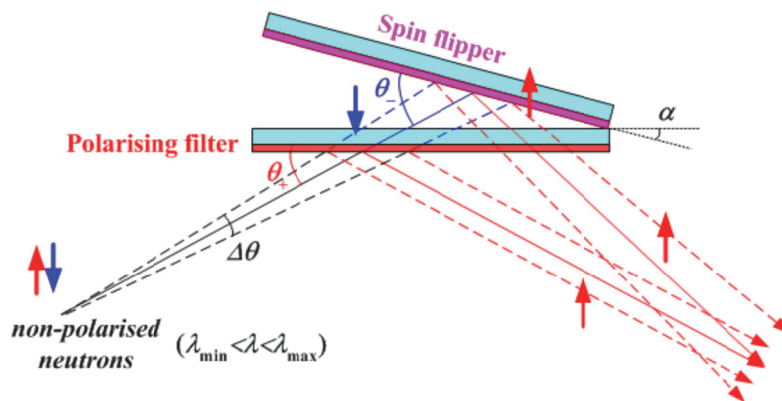


**Рис. 11.7.4.** (а) Спин-флиппер с протяженной рабочей областью: 1 - основные прямоугольные катушки, 2 - компенсационные круглые катушки. Стрелка  $n$  показывает направление нейтронного пучка. (б) Поведение вектора спина  $S$  и вектора магнитного поля  $H$  при включенном спин-флиппере.

Основные катушки имеют размеры  $150 \times 250 \text{ мм}$  и установлены перпендикулярно направлению пучка поляризованных нейтронов. Круглые катушки предназначены для компенсации рассеянных магнитных полей. Можно показать аналитически, что при одинаковом направлении электрического тока в основных катушках (встречном направлении тока в близких друг другу частях катушек) магнитное поле от них в первом приближении имеет только одну

ненулевую компоненту – вдоль оси  $y$ . Причем направление этой компоненты меняет знак в широкой области значений координаты  $x$  при  $z = 0$  (рис. 11.7.4b). Такой спин-флиппер не накладывает ограничений на размер пучка вдоль оси  $x$ , что и определяет его преимущества при использовании на пучках, получаемых с помощью зеркальных поляризующих нейтронотводов.

В работе [Pleshanov, Syromyatnikov, 2016] был практически испытан спин-флиппер на основе ларморовского прецессионного покрытия (пленка  $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ , 71.1 нм) на немагнитном многослойном зеркале ( $\{\text{NiMo}(6.96 \text{ нм})/\text{Ti}(6.17 \text{ нм})\} \times 20$ ), с помощью которого оказался возможен переворот спина при отражении (отражатель-флиппер). Такой спин-флиппер в комбинации с зеркальным поляризатором позволяет, в принципе, удвоить интенсивность пучка поляризованных нейтронов. Вариант такого устройства, описание которого дано в [Pleshanov, 2014] и где оно названо гиперполяризатором, показан на рис. 11.7.5. В нем нейтроны сначала разделяются по спиновым состояниям, а затем одна из поляризаций переворачивается. Экспериментальная проверка подтвердила работоспособность этого устройства, причем эффективность переворота спина при зеркальном отражении оказалась близкой к 1. Таким образом, с помощью гиперполяризатора может быть получен пучок с поляризацией до 100% и с удвоенной интенсивностью. При этом, однако, происходит заметное увеличение расходимости полученного пучка.



**Рис. 11.7.5.** Схема гиперполяризатора, состоящего из поляризующего зеркала, отражающего нейтроны со спином «вверх» и отражателя-флиппера, переворачивающего спин прошедших нейтронов и отражающего их.

### 11.7.3. Линейный анализ поляризации

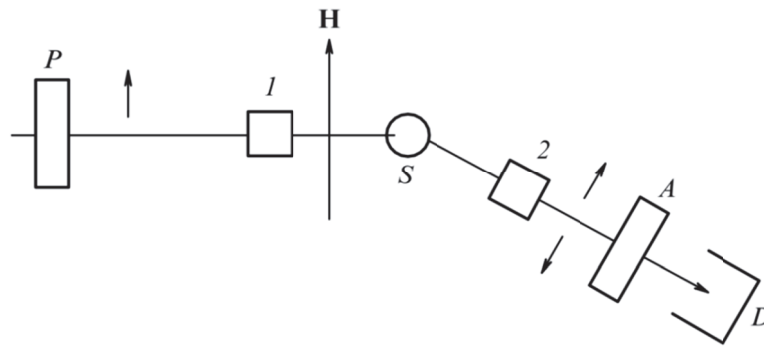
В этом разделе мы кратко рассмотрим два основных в наши дни метода изучения поляризации рассеянных нейтронов [Малеев, 2002].

Суть метода, развитого в классической работе [Moon et al., 1969], состоит в следующем. Образец находится в слабом ведущем магнитном поле,

фиксирующем направлении поляризации  $\vec{P}_0$  падающих нейтронов. Измеряются сечения рассеяния с изменением поляризации (spin-flip scattering) и без изменения поляризации (non-spin-flip scattering). Схема соответствующей установки показана на рис. 11.7.6.

Если принять направление ведущего поля за ось  $z$ , то имеются две вероятности  $n_+$  и  $n_-$  того, что спин до рассеяния направлен вдоль ( $n_+$ ) и против ( $n_-$ ) поля. Они связаны условием нормировки  $n_+ + n_- = 1$ , и проекция вектора поляризации на ось  $z$  имеет вид  $P_z = n_+ - n_-$ . Очевидно, имеются четыре сечения рассеяния: два  $\sigma_{++}$ ,  $\sigma_{--}$  без переворота спина и два  $\sigma_{+-}$ ,  $\sigma_{-+}$  с переворотом спина, где левый (первый) и правый (второй) индексы соответствуют проекциям спина до и после рассеяния.

Сечение  $\sigma_{++}$  измеряется, когда не включены флипперы 1 и 2 на рис. 11.7.4 и через установку проходят только нейтроны со спинами, направленными вверх. Сечение  $\sigma_{-+}$  измеряется, если включен флиппер 2, меняющий направление спина нейтронов, имевших вначале спин вверх и рассеянных с переворотом спина. Аналогично, сечение  $\sigma_{+-}$  измеряется при включении флиппера 1, а сечение  $\sigma_{--}$  измеряется, если включены оба флиппера.



**Рис. 11.7.6.** Схема установки для линейного анализа поляризации:  $P$  – поляризатор, 1 и 2 – флипперы, меняющие направление поляризации на противоположное,  $S$  – образец, находящийся в магнитном поле  $\mathbf{H}$ ,  $A$  – анализатор,  $D$  – детектор. Стрелками показаны направления начальной поляризации  $\mathbf{P}_0$  и два возможных направления поляризации после рассеяния [Moon et al., 1969].

Для сечения рассеяния и проекции  $P_z$  поляризации рассеянных нейтронов имеем

$$\hat{\sigma} = \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_{++} + \hat{\sigma}_{--} + \hat{\sigma}_{+-} + \hat{\sigma}_{-+}) + \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_{++} + \hat{\sigma}_{--} - \hat{\sigma}_{+-} - \hat{\sigma}_{-+}), \quad (11.7.7)$$

$$\hat{\sigma}P_z = \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_{++} - \hat{\sigma}_{--} + \hat{\sigma}_{-+} - \hat{\sigma}_{+-}) + \frac{1}{2}P_0(\hat{\sigma}_{++} + \hat{\sigma}_{--} - \hat{\sigma}_{-+} - \hat{\sigma}_{+-}). \quad (11.7.8)$$

Обычно зеемановская энергия нейтрона в поле пренебрежимо мала по сравнению с его кинетической энергией. В этом случае  $\sigma_{++} = \sigma_{--} = \sigma_{\text{nsf}}$ , где  $\sigma_{\text{nsf}}$  – сечение без переворота спина.

В результате из (11.7.7) и (11.7.8) следует

$$\hat{\sigma} = \hat{\sigma}_{\text{nsf}} + \hat{\sigma}_{\text{sf}} + \frac{1}{2}P_0(\hat{\sigma}_{-+} - \hat{\sigma}_{+-}), \quad (11.7.9)$$

$$\hat{\sigma}P_z = \frac{1}{2}P_0(\hat{\sigma}_{+-} - \hat{\sigma}_{-+}) + \frac{1}{2}P_0(\hat{\sigma}_{\text{nsf}} - \hat{\sigma}_{\text{sf}}), \quad (11.7.10)$$

где  $\hat{\sigma}_{\text{sf}} = \hat{\sigma}_{+-} + \hat{\sigma}_{-+}$  – полное сечение с переворотом спина. Сечение является скаляром, а поляризация – аксиальным вектором. Поэтому сечение может зависеть от поляризации  $P_0$  только при наличии в системе аксиального вектора. При этом же условии нейтроны могут поляризоваться при рассеянии.

Недостатком метода линейного анализа поляризации является то, что невозможно отличить поворот вектора поляризации от изменения его длины. Поэтому был разработан метод трехмерного анализа поляризации.

#### 11.7.4. Трехмерный анализ поляризации

В работе [Halpern and Johnson, 1939] была установлена связь между поляризацией до  $(\vec{P}_0)$  и после  $(\vec{P})$  рассеяния и вектором передачи импульса  $\hat{q} = \vec{q}/q$  (см. гл. 6):

$$\vec{P} = -\hat{q}(\hat{q} \cdot \vec{P}_0). \quad (11.7.11)$$

Эта формула для рассеяния в магнитно-изотропной среде была переоткрыта Малеевым [Малеев, 1965] и легла в основу нового метода трехмерного анализа поляризации [Огороков и др., 1972], который был разработан и развит Гатчинской научной школой физики поляризованных нейтронов под руководством Г.М.Драбкина, С.В.Малеева и А.И.Огорокова. Этот метод, дополненный асимптотической теорией Малеева, по-существу, дал основание новому безмодельному подходу в нейтронных исследованиях магнитных систем.

Согласно (11.7.11), если мы определим вектор  $\vec{P}$ , то будем знать направление вектора  $\vec{q}$ . Величина переданного импульса  $q$  вычисляется из треугольника рассеяния, так как начальный импульс  $k_0$  и угол рассеяния  $\theta$  заданы условиями эксперимента. Таким образом, у нас имеется полная информация о процессе рассеяния. Измерив компоненты  $P_x$ ,  $P_y$  и  $P_z$ , можно отдельно определить упругое (по  $P_x$  и  $P_y$ , перпендикулярных оси пучка) и неупругое (по  $P_z$ , параллельной оси пучка) магнитное рассеяние. Наконец, правило сумм [Малеев, 1961]

$$P_x/P_{0x} + P_y/P_{0y} + P_z/P_{0z} = -1 \quad (11.7.12)$$

позволяет выделить фон реакторного зала и ядерное рассеяние.



Гильяри Моисеевич Драбкин (23.12.1922 – 27.06.2014).

Российский ученый, доктор физико-математических наук, профессор, основатель ведущей в мире научной школы физики поляризованных нейтронов (Петербургский институт ядерной физики им. Б.П.Константинова РАН), лауреат государственной премии СССР (1986) за создание новых методов исследования твердого тела на стационарных ядерных реакторах.

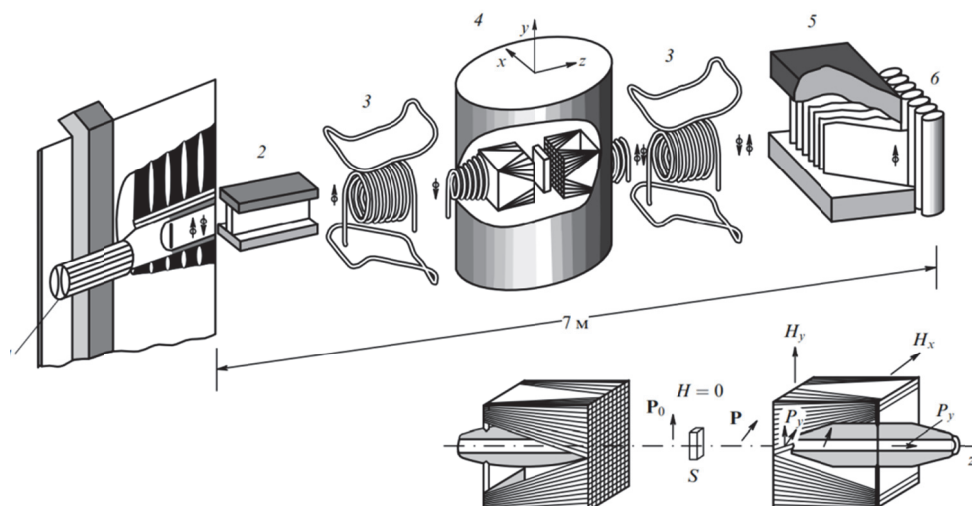
Алексей Иванович Огороков (4.08.1934 – 15.03.2022).  
Российский ученый, доктор физико-математических наук, профессор, главный научный сотрудник Петербургского института ядерной физики им. Б.П.Константинова НИЦ «Курчатовский институт», руководитель ведущей в мире научной школы физики поляризованных нейтронов, лауреат государственной премии СССР (1986) за создание новых методов исследования твердого тела на стационарных ядерных реакторах.



При трехмерном анализе начальная поляризация нейтронов задается последовательно вдоль трех взаимно перпендикулярных направлений  $x$ ,  $y$  и  $z$ , а затем после рассеяния на образце, находящемся в нулевом магнитном поле, измеряются все три компоненты вектора поляризации рассеянных нейтронов. Таким образом определяется поляризационная матрица  $P_{fi}$ , где индексы « $f$ » и « $i$ », указывающие на конечную и начальную поляризации, пробегает значения  $x$ ,  $y$  и  $z$ . В результате наряду с диагональными компонентами  $P_{xx}$ ,  $P_{yy}$  и  $P_{zz}$ , измеряемыми при линейном анализе поляризации, определяются также недиагональные компоненты  $P_{xy}$  и т.д., описывающие поворот поляризации при рассеянии.

Схема установки для малоуглового трехмерного анализа поляризации показана на рис. 11.7.7. Трехмерный анализ требует значительного времени измерения и больших интенсивностей нейтронных пучков. Поэтому он пока не использовался для неупругого рассеяния с измерением переданной энергии.





**Рис. 11.7.7.** Установка для трехмерного анализа поляризации при малоугловом рассеянии: 1 – коллиматор, 2 – зеркальный поляризатор; 3 – флипперы; 4 – модуль «Вектор», 5 – двадцатиканальный зеркальный анализатор, 6 – детекторы. Внизу показаны задающий и анализирующий блоки модуля «Вектор», состоящие из взаимно перпендикулярных соленоидов прямоугольного сечения в случае измерения составляющей  $P_y$  поляризации ( $S$  – образец в нулевом поле [Огороков и др., 1975]).

### Рекомендованная литература к главе 11

Maier-Leibnitz H., Springer T. *The use of neutron optical devices on beam-hole experiments*, J. Nuclear Energy. Parts A/B. Reactor Science and Technology **17** (1963) 217-225.

Mezei F. *The Reason d'Être of Long Pulse Spallation Sources*, J. Neutron Res. **6** (1997) 3-32.

Никитенко Ю.В., Сыромятников В.Г. (2013), *Рефлектометрия поляризованных нейтронов*, М.: Физматлит.

Williams W.G. (1988), *Polarized neutrons*, Oxford: Clarendon Press.

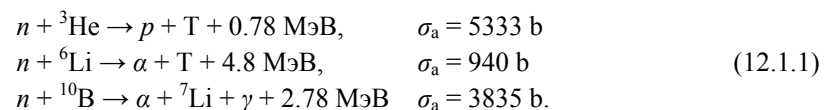
## ГЛАВА 12. ДЕТЕКТОРЫ НЕЙТРОНОВ

Детектор рассеянных на образце нейтронов, является одним из основных узлов любого нейтронного спектрометра. Его правильный выбор, уровень параметров и степень надежности работы в значительной степени определяют возможность успешного проведения экспериментов. Хотя основные принципы работы детекторов нейтронов остаются неизменными с 1950-х годов, т.е. со времени начала их широкого использования, их конструкция постоянно совершенствуются. Особенно это касается так называемых широкоапертурных детекторов, с большой площадью регистрации, охватывающих большой телесный угол и, как правило, позиционно-чувствительных. Возникают новые варианты их геометрической конфигурации, методов съема информации, совершенствуются технические характеристики. В связи с этим, в настоящей главе будут приведены только базовые сведения о детекторах медленных нейтронов и рассмотрены тенденции их развития. Для более подробного ознакомления с особенностями конструкции и функционирования отдельных типов детекторов следует обратиться к специальной литературе. Общее рассмотрение проблем регистрации различных типов излучений, включая медленные нейтроны, можно найти в монографиях [Калашников, Козодаев, 1966] и [Knoll, 2010].

### § 12.1. Ядерные реакции с медленными нейтронами (см. также § 1.3)

Электрический заряд нейтрона равен нулю и, соответственно, он не производит ионизации среды. Поэтому для их детектирования используются ядерные реакции поглощения, в результате которых образуются заряженные частицы, т.е. в детекторах нейтронов регистрируются продукты реакции нейтронов с ядрами. Для регистрации быстрых нейтронов, с энергиями  $>100$  кэВ используются еще и упругое рассеяние нейтронов на легких элементах (водороде, дейтерии, гелии), но здесь этот метод не рассматривается.

Для детектирования медленных нейтронов основными являются следующие три реакции:



В (12.1.1) цифры означают энергию, приходящуюся на образующиеся продукты реакции (тритий, протон,  $\alpha$ -частицу, ядро лития и  $\gamma$ -квант) и приведена величина сечения реакции поглощения нейтрона для  $E = 0.025$  эВ ( $\lambda = 1.8 \text{ \AA}$ ). В этих реакциях используются определенные изотопы элементов, поскольку именно для них сечения реакции с нейтроном велики. Например, для лития существуют два

стабильных изотопа:  ${}^6\text{Li}$ , распространенность которого составляет 7.5%,  $\sigma_a = 940 \text{ b}$ , и  ${}^7\text{Li}$ , для которого соответствующие цифры есть 92.5% и 71 b. Аналогичная ситуация для стабильных изотопов бора:  ${}^{10}\text{B}$  (19.8%,  $\sigma_a = 3835 \text{ b}$ ),  ${}^{11}\text{B}$  (80.2%,  $\sigma_a = 0.0055 \text{ b}$ ). Для увеличения эффективности регистрации нейтронов, смеси изотопов лития и бора приходится обогащать до содержания (80 – 95)%  ${}^6\text{Li}$  и  ${}^{10}\text{B}$ . В природном гелии содержится только около 0.0001% изотопа  ${}^3\text{He}$ , поэтому его получают искусственным путем на атомных станциях. В детекторах гелий используется в газообразном виде, бор – в виде газа (в соединении  $\text{BF}_3$ ) или напыленным на подложки, литий – как дополнительный элемент в материалах сцинтилляторов.

## § 12.2. Типы и основные характеристики нейтронных детекторов

В специальной литературе нейтронные детекторы классифицируются по нескольким различным признакам их конструкции: газовые или твердотельные, одиночные или позиционно-чувствительные, счетного или фотографического типа. Внутри каждой из этих категорий можно выделить два или несколько дополнительных признаков, в основном касающихся методов регистрации образующегося в детекторе электрического заряда. Например, газовые детекторы могут быть одиночными или позиционно-чувствительными, которые в свою очередь могут быть одно- (1D) или двухкоординатными (2D). В этой главе рассматриваются три типа нейтронных детекторов, представляющих основные направления развития, постепенно сформировавшиеся, начиная с 1950-х годов:

- ~ газовые одиночные и позиционно-чувствительные детекторы,
- ~ сцинтилляционные детекторы большой площади,
- ~ детекторы малой площади с высоким позиционным разрешением.

Каждый конкретный тип детекторов медленных нейтронов характеризуется многочисленными параметрами, среди которых: эффективность регистрации, мертвое время, собственный фон, чувствительность к  $\mu$ -фону. Для широкоапертурных и позиционно-чувствительных детекторов (ПЧД) важны еще величина охватываемого телесного угла, позиционная разрешающая способность, однородность эффективности по координатам. Для детекторов, используемых на дифрактометрах высокого разрешения по времени пролета необходимо, чтобы толщина детектора не ухудшала разрешающую способность по времени. В некоторых случаях важен динамический диапазон детектора, который определяется отношением максимально возможной загрузки к фоновому счету, а также радиационная стойкость детектора.

Эффективность детектора определяет вероятность, с которой попавший в детектор нейтрон будет зарегистрирован. Она зависит от линейного коэффициента поглощения нейтронов в рабочем теле детектора и возможной длины пробега нейтронов в нем. Линейный коэффициент поглощения,  $\mu$ , в свою очередь зависит от плотности поглощающей среды,  $n$ , и величины сечения поглощения,  $\sigma_a$ ,

а именно, от  $\mu = n \cdot \sigma_a$ . Для всех реакций (12.1.1) функциональная зависимость  $\sigma_a$  от энергии медленного нейтрона подчиняется «закону  $1/v$ », где  $v$  – скорость нейтрона:  $\sigma_a \sim 1/v \sim 1/E^{1/2} \sim \lambda$ . Т.е. можно написать, что

$$\sigma_a = \sigma_{a0} \cdot (\lambda/\lambda_0), \quad (12.2.1)$$

где  $\sigma_{a0}$  – сечение поглощения, измеренное при  $\lambda = \lambda_0$ . Рассчитаем для примера вероятность поглощения нейтрона в  $^3\text{He}$  и  $^{10}\text{BF}_3$  газовых детекторах. При нормальных условиях молярный объем всех газов одинаков и составляет  $V_m = 22421 \text{ см}^3/\text{моль}$  и, соответственно, в единице объема число ядер  $^3\text{He}$  и  $^{10}\text{B}$  одинаково и составляет  $n = A/V_m = 2.686 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ , где  $A = 6.022 \cdot 10^{23} \text{ моль}^{-1}$  – число Авогадро. Стандартное выражение для вероятности поглощения есть:

$$\varepsilon = 1 - \exp(-n \cdot \sigma_a \cdot p \cdot t), \quad (12.2.2)$$

где  $p$  – давление газа,  $t$  – толщина регистрирующего слоя газа. Величина  $\mu = n \cdot \sigma_a$  при  $\lambda = 1 \text{ \AA}$  составляет  $\mu = 0.144 \text{ см}^{-1}$  для  $^3\text{He}$  и  $\mu = 0.090 \text{ см}^{-1}$  для  $^{10}\text{BF}_3$  (для 85% обогащения газа изотопом  $^{10}\text{B}$ ). В детекторах с гелием давление газа может быть увеличено вплоть до 10 атм., тогда как специфика газа  $\text{BF}_3$  не позволяет использовать его при давлении больше 1 атм. Зависимости  $\varepsilon(\lambda)$  для  $^3\text{He}$  и  $^{10}\text{BF}_3$  газовых детекторов с типичным для них набором параметров показаны на рис. 12.2.1. Видно, что эффективность борного детектора превышает 50% только для очень больших длин волн нейтронов или при очень большой толщине детектирующего слоя. Наоборот, эффективность гелиевого детектора может быть достаточно велика даже для  $\lambda \sim 2 \text{ \AA}$ . Очевидно, что основным фактором его высокой эффективности является возможность работы при больших давлениях газа.

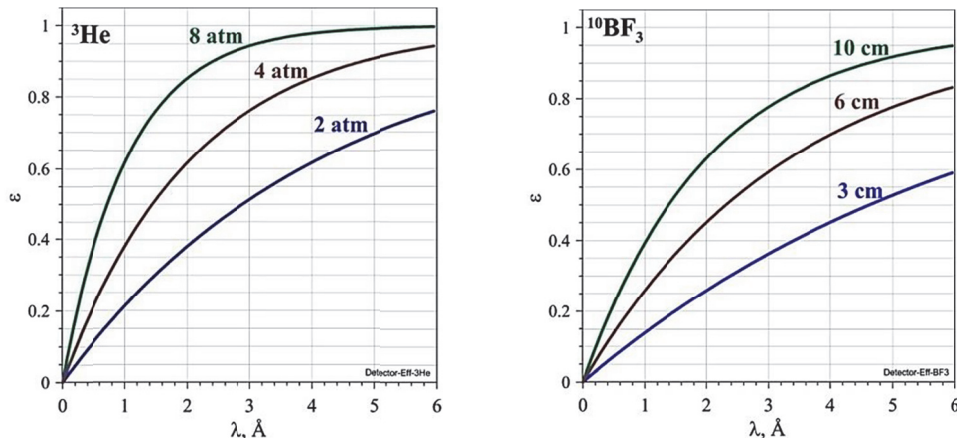
Формула (12.2.2) позволяет оценить эффективность детектора, но ее точный расчет должен учитывать еще несколько факторов. Во-первых, у любого детектора есть корпус, в котором нейтроны в какой-то степени поглощаются, что уменьшает эффективность. Во-вторых, толщина регистрирующего слоя может быть переменной, как, например, в цилиндрическом газовом детекторе, и эффективность определяется какой-то средней величиной пути нейтрона в детекторе. Наконец, эффективность, как правило, зависит от места регистрации нейтронов, что связано с неоднородностью электрического поля, краевыми эффектами и др.

Как и любая счетная система, детектор способен регистрировать ограниченное число событий в единицу времени, и возможная скорость счета зависит от длительности по времени образующегося в детекторе импульса и от типа «мертвого времени». Под мертвым временем (МВ) (или временем разрешения) понимают интервал, в течение которого детектор не способен регистрировать новый импульс. Различают два типа мертвого времени. В

детекторах с «непродлевающимся» МВ,  $\tau_{\text{не}}$ , следующий нейтрон может быть зарегистрирован сразу по истечении  $\tau_{\text{не}}$  независимо от поступления нового события в его пределах. В детекторах с «продлевающимся» МВ,  $\tau_e$ , появление нового события в его пределах расширяет интервал, в течение которого детектор не способен регистрировать новый импульс, на  $\tau_e$ . В учебных курсах по детекторам показывается, что для этих двух случаев измеряемая скорость счета, соответственно, есть:

$$J = J_0 / (1 + J_0 \cdot \tau_{\text{не}}), \quad J = J_0 \cdot \exp(-J_0 \cdot \tau_e), \quad (12.2.3)$$

где  $J_0$  – истинная средняя скорость поступления событий (загрузка детектора). Соответствующие зависимости приведены на рис. 12.2.2.



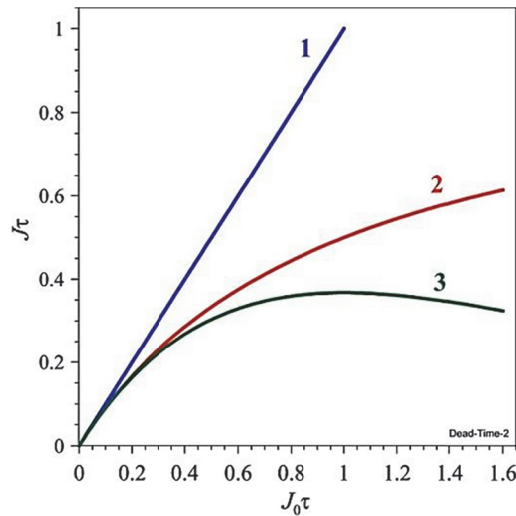
**Рис. 12.2.1.** Зависимости эффективности регистрации от длины волны нейтрона для  $^3\text{He}$  и  $^{10}\text{BF}_3$  газовых детекторов. В случае  $^3\text{He}$  кривые рассчитаны для фиксированной толщины регистрирующего слоя  $t = 1.5$  см и для разных давлений газа. В случае  $^{10}\text{BF}_3$  кривые рассчитаны для фиксированного давления газа  $p = 1$  атм и различных толщин регистрирующего слоя.

Возможную загрузку детектора при изотропном рассеянии нейтронов на образце, например, в дифракционном эксперименте с поликристаллом можно оценить исходя из соотношения:

$$J_0 = \Phi_0 \cdot S \cdot (\Omega_d / 4\pi) \cdot \delta, \quad (12.2.4)$$

где  $\Phi_0$  – поток нейтронов на образце,  $S$  – площадь образца,  $\Omega_d / 4\pi$  – доля телесного угла, охватываемого детектором,  $\delta$  – рассеивающая способность образца (доля нейтронов, рассеянных в  $4\pi$  стерадиан, от их полного числа, падающих на образец). Полный поток нейтронов на образце на современных дифрактометрах составляет  $\sim 10^7$  н/см<sup>2</sup>/с, телесный угол детектора может быть равным 0.1 ср. При площади образца 1 см<sup>2</sup> и рассеивающей способности образца  $\delta \approx 0.1$  получаем,

что нагрузка детектора может составить  $\sim 10^4$  н/с. Если величины  $J_0\tau_{не}$  и  $J_0\tau_n \ll 1$ , то обе формулы переходят в  $J = J_0 \cdot (1 - J_0\tau)$  и, например, при  $\tau = 10^{-6}$  сек (что характерно для газовых детекторов) и нагрузке  $J_0 = 10^4$  н/сек просчеты будут составлять около 1%.

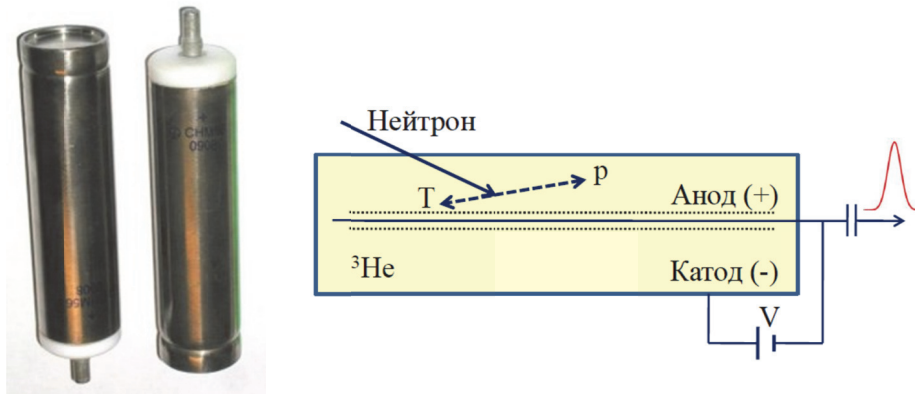


**Рис. 12.2.2.** Схематическое представление счетных характеристик детектора: (1) без мертвого времени, (2) мертвое время непродлевающегося типа, (3) мертвое время продлевающегося типа.  $J_0\tau$  — нормализованная нагрузка на входе детектора,  $J\tau$  — нормализованная скорость регистрации импульсов.

### § 12.3. Газовые детекторы

Малая величина мертвого времени, малый собственный фон ( $< 0.1$  н/сек), низкая чувствительность к  $\mu$ -фону газовых детекторов в сочетании с достаточно высокой эффективностью регистрации нейтронов определили их базовую роль в развитии систем детектирования нейтронов во всех нейтронных центрах мира. Наиболее простыми и дешевыми являются одиночные газовые детекторы, которые обычно называются нейтронными счетчиками. Сначала, еще в конце 1930-х годов, появились счетчики с газом  $^{10}\text{BF}_3$ , затем, в начале 1960-х годов, были придуманы  $^3\text{He}$ -детекторы с высоким давлением газа. Конструктивно они представляют собой наполненный газом цилиндр из меди или нержавеющей стали, внутри которого закреплена нить малого диаметра ( $\sim 0.03$  мм) (рис. 12.3.1). На нить (анод) подается положительный потенциал относительно корпуса и при ионизации газа заряженными частицами образующиеся электроны дрейфуют к аноду. Вблизи анода, где градиент электрического поля велик, первичные электроны производят дополнительную ионизацию. Этот лавинообразный процесс (его называют газовым усилением) увеличивает амплитуду импульса до величины, достаточной для регистрации и дискриминации от импульсов,

производимых  $\gamma$ -квантами. В некотором интервале напряжений, обычно  $\sim(1 \div 2)$  кВ, собираемый на аноде заряд пропорционален величине напряжения, что отразилось в названии одиночных газовых детекторов, работающих в таком режиме, – «пропорциональные» счетчики.

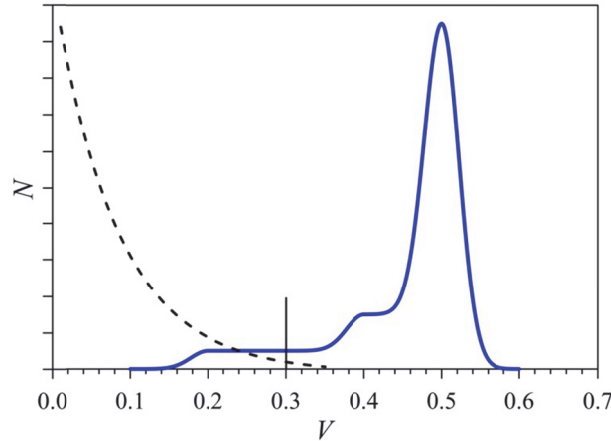


**Рис. 12.3.1.** Внешний вид и схема включения цилиндрического газового пропорционального  $^3\text{He}$ -счетчика. При захвате нейтрона ядром  $^3\text{He}$  образуются заряженные тритон (Т) и протон (р), которые ионизируют газ. Свободные электроны дрейфуют к анодной нити, вблизи которой происходит лавинообразная ионизация (ее область обозначена). Образовавшийся электрический сигнал, длительностью  $\sim 1$  мкс, подается на электронные блоки для усиления, дискриминации и формирования. Источник постоянного напряжения создает потенциал  $V$  между нитью и корпусом.

Важным достоинством газовых счетчиков является их спектр амплитуд импульсов (рис. 12.3.2), удобный для дискриминации шумов и фоновых сигналов. Хорошо выделенный пик от реакции с медленными нейтронами позволяет, пропуская сигналы через дискриминатор, почти полностью исключить срабатывание электроники накопления от сигналов, образующихся при

Борные и гелиевые счетчики долгое время составляли основу детекторных систем во всех нейтронных центрах мира. Их габариты варьировались в пределах  $(2 \div 5)$  см в диаметре и  $(10 \div 30)$  см по длине, и они использовались как одиночные, так и в виде сборки, перекрывающей некоторый интервал углов рассеяния. Типичным примером является детекторная система одного из первых дифрактометров высокого разрешения D1A (ILL, Франция), представляющая собой сборку из 11 пропорциональных счетчиков (50 мм в диаметре, 100 мм по длине, давление  $^3\text{He}$  газа – 5 атм), расположенных по дуге с радиусом 65 см и перекрывающих интервал углов рассеяния  $2\theta = 60^\circ$  [Hewat, Bailey, 1976]. Вместо сборки из отдельных счетчиков детектор может представлять собой единый объем с расположенными в нем индивидуальными анодами. Примером таких дугообразных детекторов (получивших название «banana-like») является детектор дифрактометра HRPT (PSI, Швейцария) [Fischer et al., 2000]. В его объеме, заполненном газом  $^3\text{He}$  при давлении 3.6 атм (с добавкой 1.1 атм  $\text{CF}_4$ ) с шагом

2.5 мм расположены 1600 отдельных анодных нитей. Дуга детектора имеет радиус 1.5 м, высоту входного окна 15 см и охватывает интервал углов рассеяния  $2\theta = 160^\circ$  с угловым шагом  $0.1^\circ$ . регистрации  $\gamma$ -лучей.



**Рис. 12.3.2.** Идеализированное распределение импульсов газового счетчика по амплитуде. Сплошной линией показано распределение амплитуд при регистрации медленных нейтронов. Плоские участки на кривой связаны с потерей части заряда из-за влияния стенок счетчика. Пунктирной линией показано распределение амплитуд при регистрации  $\gamma$ -квантов и от шумов электроники. Вертикальной линией показан возможный уровень дискриминации, пропускаются только сигналы с большими амплитудами.

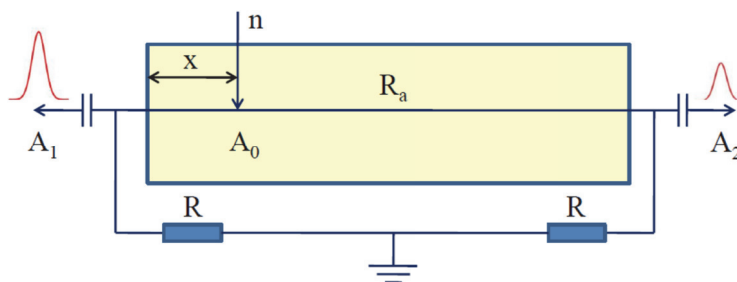
Естественным развитием одиночных газовых счетчиков явилось превращение их в одномерные позиционно-чувствительные детекторы (1D ПЧД). Такой детектор за счет увеличения телесного угла, причем без существенного ухудшения разрешения, позволяет во много раз сократить время эксперимента. Кроме того, для некоторых типов экспериментов одновременное наблюдение различных областей обратного пространства с помощью ПЧД, может быть принципиально необходимым. Основное конструктивное отличие ПЧД от обычного счетчика состоит в использовании двух выходов для сигналов с анодной нити, вместо одного. Были предложены два метода определения координаты в 1D ПЧД (их подробное описание можно найти в [Radeka, 1974]): по времени прихода импульсов на выходы детектора или по величине их амплитуд. Схема анализа амплитуд сигналов показана на рис. 12.3.3. Из простых рассуждений следует, что если анодная нить имеет сопротивление  $R_a$ , то координату регистрации нейтрона можно определить из соотношения (обозначения на рисунке):

$$x/L = [A_2 + (A_2 - A_1) \cdot (R/R_a)] / (A_1 + A_2), \quad (12.3.1)$$

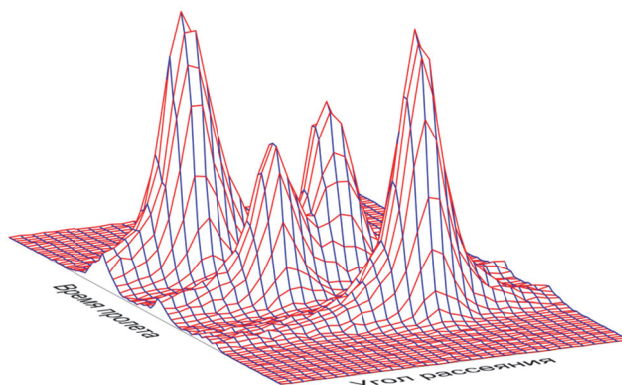


где  $A_1$  и  $A_2$  – амплитуды сигналов на выходах детектора,  $L$  и  $R_a$  – длина и сопротивление анодной нити,  $R$  – сопротивление нагрузки.

Уже в конце 1970-х годов 1D ПЧД начали использоваться на спектрометрах с монохроматическим пучком нейтронов. Например, в работе [Eder et al., 1977] дано описание порошкового дифрактометра, детекторная система которого выполнена из двух  $\text{BF}_3$  1D ПЧД, имеющих диаметр 50 мм и длину 910 мм. Сопротивление анодной нити составляло 2.3 кОм, эффективность регистрации нейтронов с  $\lambda = 1 \text{ \AA}$  была около 50%. Каждый счетчик перекрывал интервал углов около  $23^\circ$  в горизонтальной плоскости с зазором между ними в  $12^\circ$ , что позволило в 20 раз сократить время экспериментов.



**Рис. 12.3.3.** Схема включения цилиндрического газового пропорционального счетчика с высокоомным анодом. Амплитуда сигналов на выходах зависит от места регистрации нейтрона.



**Рис. 12.3.4.** Дифракционные данные, зарегистрированные на дифрактометре по времени пролета с помощью 1D ПЧД в окрестности узла 440 монокристалла  $\text{KD}_2\text{PO}_4$ , охлажденного до 80 К. При низкой температуре происходит двойникование кристалла и формируется составная обратная решетка, состоящая из 4 компонент. Экспериментальными координатами двумерного сечения обратного пространства являются время пролета и угол рассеяния. При необходимости они могут быть переведены в координаты обратной решетки кристалла.

Результаты одного из первых применений 1D ПЧД на дифрактометре по времени пролета представлены в работе [Balagurov et al., 1982]. Использовался

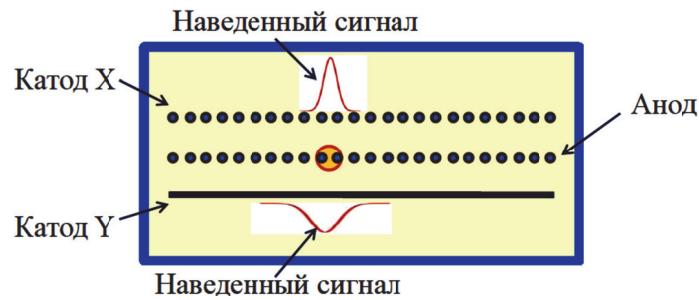
<sup>3</sup>Не счетчик небольших размеров (диаметр 30 мм, длина 150 мм,  $p = 7$  атм) сопротивление анодной нити составляло 700 Ом. Позиционное разрешение счетчика (полная ширина распределения на половине высоты) составляло 1.2 см. Из-за малой длины счетчика интервал охватываемых углов рассеяния был всего  $12^\circ$ . Тем не менее, за счет двумерного сканирования обратного пространства (по углу рассеяния и по времени пролета) скорость набора данных возрастала в несколько сотен раз по сравнению с дифрактометром, работающем на монохроматическом пучке нейтронов и с обычным счетчиком. Пример дифракционных данных, полученных для 2D сечения одного из узлов обратной решетки монокристалла с помощью 1D ПЧД на дифрактометре по времени пролета, показан на рис. 12.3.4. Число индивидуальных элементов сечения составляло в этом случае около 6000.



Ж. Шарпак (01.08.1924 – 29.09.2010) (G. Charpak) – французский физик, работал в ЦЕРН (Женева), где занимался детекторами элементарных частиц. Нобелевская премия по физике «за открытие и создание детекторов частиц, в частности, многопроволочной пропорциональной камеры» (1992).

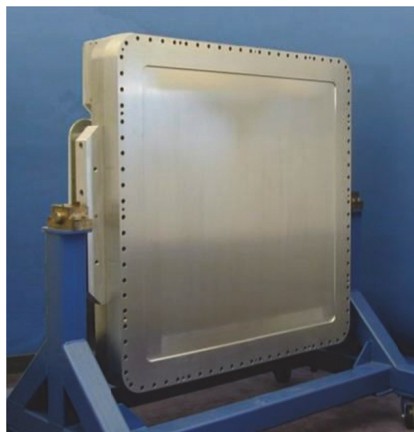
Следующим шагом в развитии газовых детекторов нейтронов стала адаптация для нейтронных экспериментов многопроволочных пропорциональных камер (МПК), изобретенных в 1968 году Г. Шарпаком (G. Charpak) (за что ему в 1992 году была присуждена Нобелевская премия по физике) и предназначенных поначалу для исследований по физике элементарных частиц на ускорителях высоких энергий. МПК (в английской аббревиатуре MWPC – multiwire proportional chamber) представляет собой газовый объем, в котором расположены три системы электродов – две плоскости катодов и плоскость анодов между ними (рис. 12.3.5).

Стандартным вариантом МПК является исполнение всех трех электродов из тонких ( $\sim 20$  мкм) параллельных нитей с шагом 2 мм, причем нити в плоскостях катодов X и Y взаимно перпендикулярны. Расстояние между плоскостями электродов обычно составляет около 10 мм, объем камеры заполняется газом <sup>3</sup>Не при давлении  $1 \div 2$  атм, к которому добавляется газ CF<sub>4</sub> для уменьшения пробега тритона и протона. Образовавшиеся вдоль следов заряженных частиц свободные электроны формируют лавину на ближайших анодных нитях. На нитях катодов возникают наведенные сигналы, которые после их регистрации и обработки соответствующей электроникой позволяют определить координаты захвата нейтрона.



**Рис. 12.3.5.** Схема расположения электродов в нейтронной МПК. Нити катодов X и Y расположены перпендикулярно относительно друг друга. Показаны место образования лавины на аноде и наведенные сигналы на катодах. Сигнал на нитях катода Y меньше по амплитуде и шире, чем на катоде X, из-за различной геометрии наведения заряда.

Позиционное разрешение МПК, в основном, зависит от шага между нитями и парциального давления газа  $\text{CF}_4$  и, как правило, составляет от 2 до 5 мм. Размеры чувствительной к нейтронам области выбираются исходя из конкретной задачи, и варьируются от  $10 \times 10$  до  $100 \times 100$  см (рис. 12.3.6) при толщине слоя гелия около 3 см.



**Рис. 12.3.6.** Внешний вид нейтронной МПК с квадратным входным окном. Детектор произведен компанией ORDELA (США), его чувствительная область составляет  $1 \text{ м}^2$ , пространственное разрешение  $5 \times 5$  мм, эффективность до 80%.

Широкое внедрение МПК, которые в нейтронографической литературе принято называть двухкоординатными позиционно-чувствительными детекторами (2D ПЧД), в нейтронных центрах мира началось с конца 1970-х годов, сначала на дифрактометрах для монокристаллов (см., напр. [Albergi et al., 1975]), затем на спектрометрах малоуглового рассеяния. Также как и в случае 1D ПЧД, с МПК заметно увеличилась скорость набора данных, и появились новые

экспериментальные возможности. Например, на дифрактометрах с монохроматическим пучком 2D ПЧД дал возможность параллельного и практически непрерывного сканирования двумерных, а на дифрактометре по времени пролета трехмерных (объемных) секторов в обратном пространстве монокристалла. Это особенно важно при изучении структурных фазовых переходов или при одновременной регистрации дифракционных спектров и диффузного рассеяния, сосредоточенного между узлами обратной решетки.

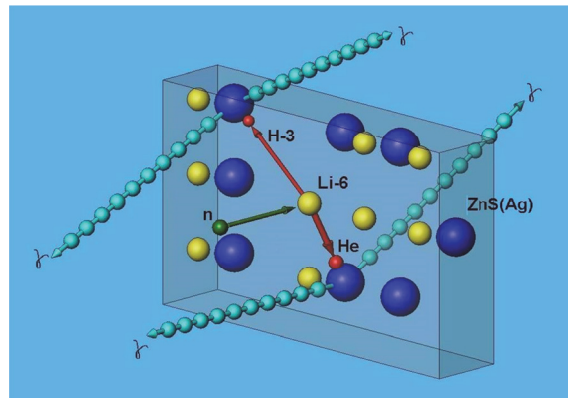
Многопроволочные 2D ПЧД оказались очень эффективными при использовании на спектрометрах малоуглового рассеяния, когда достаточно иметь позиционное разрешение на уровне нескольких миллиметров. Из-за проблем с величиной газового усиления существенно улучшить их позиционную чувствительность не удавалось. Проблему удалось решить после внедрения микростриповой технологии изготовления электродов камеры. В одном из первых вариантов микрострипового детектора нейтронов [Oed, 1988] аноды представляли собой тонкие, шириной 10 мкм полосы (стрипы) металла (хрома), нанесенные на стеклянную подложку с помощью фотолитографии. Расстояние между стрипами составляло 200 мкм. Оказалось, что такая конструкция обеспечивает необходимое газовое усиление уже при сравнительно низком напряжении ~500 В. Эта технология быстро развивается на основе разнообразных вариантов микростриповых газовых камер (в английской аббревиатуре MSGC), отличающихся от MWPC существенно более высоким временным и пространственным разрешением (см., напр. обзор [Шафранов, 2002]).

#### § 12.4. Сцинтилляционные детекторы

Сцинтилляторами называются вещества, испускающие свет при прохождении в них ионизирующего излучения. Для их использования как детектора нейтронов готовится композиция из сцинтиллятора и вещества, содержащего в своем составе элемент (изотоп) с высоким сечением захвата тепловых нейтронов. Сцинтилляционные детекторы, входящие в состав нейтронных спектрометров медленных нейтронов, в основном, создаются из двух типов сцинтилляторов – силикатного стекла, активированного Се, или пластика ZnS, активированного Ag. Активаторы, в данном случае Се или Ag, добавляются в небольшом количестве (~0.1%) в сцинтиллятор для создания локальных энергетических уровней, называемых центрами люминесценции, наличие которых в неорганических веществах и определяют их способность излучать свет. В стекло или пластик для захвата нейтронов добавляется вещество, содержащее литий, как правило, с обогащением до ~95% изотопом  ${}^6\text{Li}$ . Сцинтилляторы обязательно используются в сочетании с фотоэлектронными умножителями (ФЭУ), с помощью которых сравнительно слабые вспышки света усиливаются и преобразуются в электрические импульсы.

Стекла, содержащие  $\text{Li}_2\text{O}$ , представляют собой смесь оксидов  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  и др. в различных сочетаниях. Их достоинствами являются большая эффективность регистрации нейтронов при малой толщине детектирующего слоя ( $\sim 1$  мм), малое время послесвечения ( $\sim 70$  нс), большой выход фотонов, т.к. стекло прозрачно. Основной недостаток Li-стекло – сравнительно высокая чувствительность к  $\gamma$ -фону. Детекторы на основе Li-стекло обычно представляют собой сборки из призм-световодов, на которые наклеиваются отдельные стекла с линейными размерами от 100 до 200 мм.

Пластические сцинтилляционные экраны изготавливаются на основе органического стекла (полиметилметакрилата), в которое добавляются порошки  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  ( $\sim 40\%$  по объему) и  ${}^6\text{LiF}$  ( $\sim 15\%$  по объему). Доли составных компонент экрана также как и размер зерен сцинтиллятора оптимизируются под конкретную ситуацию. После захвата нейтрона литием заряженные частицы (тритон и  $\alpha$ -частица) возбуждают зерна сцинтиллятора, находящиеся в непосредственной близости от точки захвата, которые излучают свет с длиной волны около 460 нм (рис. 12.4.1). Трудности светосбора, связанные с разными коэффициентами преломления компонент экрана, удается преодолеть с помощью технологии спектрсмещающих волокон, которые поглощают голубые фотоны, излучаемые сцинтиллятором, и вновь излучают уже зеленые фотоны с большей длиной волны, которые транспортируются по волокну благодаря эффекту полного внутреннего отражения к входной поверхности фотоприемника. Достоинствами  $\text{ZnS}$ -сцинтиллятора являются очень низкая чувствительность к  $\gamma$ -фону и его пластические свойства, позволяющие придавать поверхности детектора любую форму. Из его недостатков обычно отмечают длительное послесвечение (до 10 мкс), ограничивающее доступную скорость счета, и низкая прозрачность, из-за которой толщина слоя пластика не может превышать 0.5 мм.

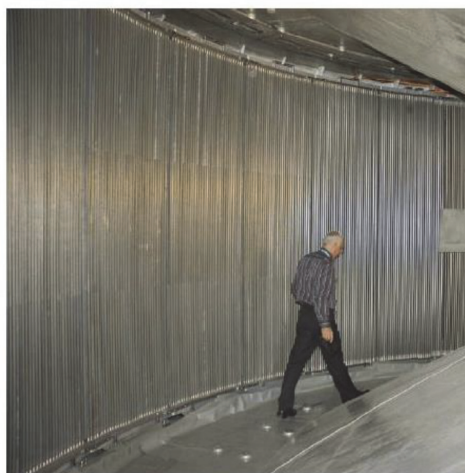


**Рис. 12.4.1.** Регистрация теплового нейтрона в сцинтилляционном экране. Желтым цветом показаны зерна кристалла  ${}^6\text{LiF}$ , синим цветом – зерна кристалла  $\text{ZnS}(\text{Ag})$ . Красным цветом показаны заряженные продукты реакции. Сцинтиллятор излучает свет с  $\lambda \approx 460$  нм.

Наиболее широко сцинтилляционные детекторы используются на спектрометрах, действующих на импульсных источниках нейтронов, что связано с малой толщиной их детектирующего слоя и, соответственно, малой неопределенностью во времени пролета. Примерами их конструкций являются детекторные системы дифрактометров высокого разрешения на реакторе ИБР-2, HRFD (Li-стекла) [Балагуров и др., 2015] и FSD (ZnS(Ag)-сцинтилляторы) [Bokuchava, 2018].

### § 12.5. Широкоапертурные газовые и сцинтилляционные детекторы

Одной из основных методических проблем при постановке экспериментов по рассеянию нейтронов является их относительно низкая светосила. Эта проблема становится особенно острой для спектрометров с высокой разрешающей способностью, для которых необходимость хорошей коллимации первичного пучка приводит к уменьшению потока нейтронов на образце. Повышения светосилы нейтронных спектрометров можно добиться, организовав параллельные измерения спектров в широком интервале переданных импульсов. Для этого необходимо увеличить телесный угол (апертуру) детекторной системы,  $\Omega$ . Современные технологии позволяют довести его до 2 – 4 стерadian, что в десятки раз больше, чем у спектрометров, созданных до начала 2000 годов.



**Рис. 12.5.1.** Детектор спектрометра IN5 (ILL, Франция). Однокоординатными счетчиками (длина – 3 м, диаметр – 2.54 см, количество – 384 шт.) заполнена площадь  $\sim 30 \text{ м}^2$ . При расстоянии от образца 4 м, телесный угол детектора составляет 1.8 ср.

Большой ( $>1 \text{ ср}$ ) телесный угол может быть организован на основе как газовых, так и сцинтилляционных детекторов. Проблемой, которая должна быть решена при создании детектора с большим телесным углом, является сохранение

геометрического вклада в функцию разрешения спектрометра на приемлемом уровне. В случае газовых детекторов простейший вариант решения этой проблемы – использование сборок из 1D ПЧД, а именно, заполнение ими некоторой площади. Показательный пример – детекторная система спектрометра IN5 (ILL, Франция) [Ollivier et al., 2010]. Отдельными, очень длинными (~3 м) счетчиками заполнена поверхность цилиндра (рис. 12.5.1) в интервале углов рассеяния от  $-12^\circ$  до  $135^\circ$ . Покрытая счетчиками площадь составляет  $30 \text{ м}^2$ , обеспечивая телесный угол 1.8 ср. Для заполнения всех счетчиков потребовалось около 3000 литров  $^3\text{He}$  и 570 литров  $\text{CF}_4$ . Параметры счетчиков выбраны таким образом, что позиционное разрешение примерно одинаково по горизонтали и вертикали и составляет  $26 \times 26 \text{ мм}$ .

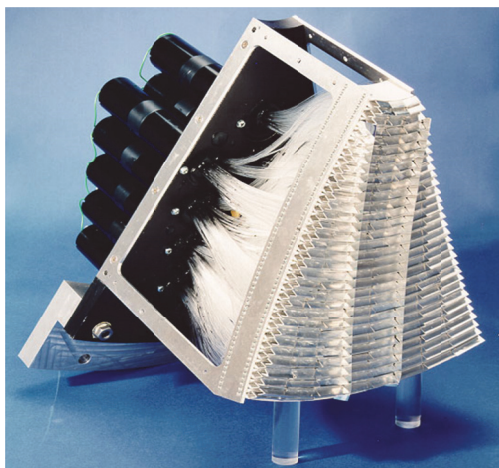
Увеличение телесного угла дугообразных детекторов с единым газовым объемом может быть достигнуто аналогичным способом – увеличивается вертикальный размер, а приемлемый уровень разрешения поддерживается использованием позиционно-чувствительных анодных нитей. При дифракции на поликристалле в этом случае регистрируются участки дифракционных колец Дебая-Шеррера (рис. 12.5.2), которые затем переводятся в стандартные зависимости интенсивности от межплоскостного расстояния.



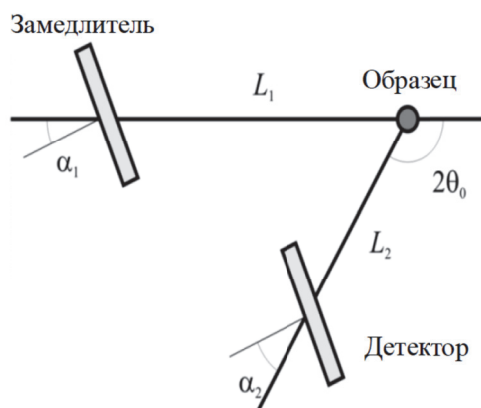
**Рис. 12.5.2.** Участки дифракционных колец Дебая-Шеррера от поликристалла, зарегистрированные на дифрактометре с монохроматическим пучком нейтронов «banana-like» детектором с большим размером по вертикали и позиционно-чувствительными анодными нитями.

Широкоапертурные сцинтилляционные детекторы также весьма широко используются на нейтронных спектрометрах. Особенно эффективным их применение оказалось на импульсных источниках нейтронов и, например, на ISIS (Великобритания) и SNS (США) большая часть спектрометров оборудована именно сцинтилляционными детекторами, в отличие от стационарного реактора в ILL (Франция), где около 90% спектрометров оборудованы газовыми детекторами. Для уменьшения геометрического вклада в функцию разрешения и сохранения высокого уровня разрешающей способности широкоапертурные сцинтилляционные детекторы, как правило, изготавливаются в виде мозаики чувствительных элементов небольших размеров (рис. 12.5.3). В таких многоэлементных детекторных системах для получения результирующего спектра применяется *электронная фокусировка*, состоящая в суммировании отсчетов от отдельных детекторных элементов с необходимым сдвигом по временной координате.





**Рис. 12.5.3.** Секция ZnS(Ag)-сцинтилляционного детектора спектрометра GEM (ISIS, Великобритания). На переднем плане мозаика из ZnS-пластика, выполненного в виде треугольных призм для увеличения пути нейтрона в сцинтиляторе. От элементов мозаики свет до ФЭУ транспортируется по спектросмещающим волокнам.



**Рис. 12.5.4.** Геометрия TOF-дифрактометра с замедлителем и детектором в виде протяженных пластин. Поверхности замедлителя и детектора наклонены на углы  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$  по отношению к средним направлениям первичного и рассеянного пучков нейтронов. Пролетное расстояние для нейтрона, вылетевшего из нижнего края замедлителя и зарегистрированного в верхнем крае детектора, меньше, чем для нейтрона, вылетевшего из верхнего края замедлителя и зарегистрированного в нижнем крае детектора. Но разница в углах рассеяния для этих двух путей и, следовательно, для скоростей нейтронов такова, что время пролета нейтронов по ним оказывается одинаковым.

Несмотря на применение систем кодирования сигналов, электронная система регистрации таких детекторов состоит из огромного числа элементов, что

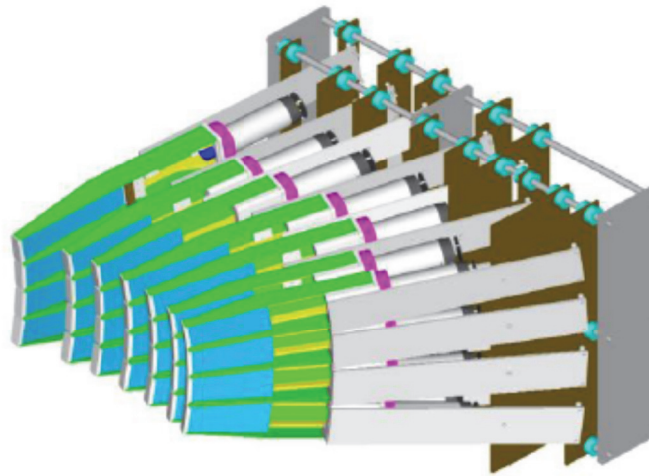


приводит к их большой стоимости. В случае TOF-дифрактометров одним из способов уменьшения числа детектирующих и электронных элементов является метод *геометрической фокусировки*, предложенный еще в 1960-е годы. Его суть состоит в том, что при дифракции, т.е. при выполнении условия Вульфа-Брэгга, есть полная корреляция между углом рассеяния и длиной волны (скоростью) нейтрона, и время пролета нейтрона от источника до детектора может быть сделано постоянным для нейтронов с разной длиной волны, если они пролетают разные пути. Например, для замедлителя и детектора, имеющих вид протяженных пластин (рис. 12.5.4), при соблюдении условий:

$$2(L_1/L) \cdot \text{tg} \alpha_1 \text{tg} \theta_0 = 1, \quad 2(L_2/L) \cdot \text{tg} \alpha_2 \text{tg} \theta_0 = 1, \quad (12.5.1)$$

(обозначения на рисунке) в первом приближении геометрический вклад в функцию разрешения равен нулю.

Метод временной фокусировки для TOF-дифрактометров был независимо и почти одновременно предложен Дж.Карпентером в США [Carpenter, 1967] и А.Холасом в Дубне [Holas et al., 1969] и впервые реализован на реакторе ИБР. В экспериментах с поликристаллами этот метод позволяет существенно (в ~5 раз) увеличить светосилу дифрактометра без заметного ухудшения разрешающей способности и до настоящего времени продолжает широко использоваться. Если размеры детектора велики, то линейные условия (12.5.1) становятся некорректными и фокусирующую линию или поверхность фокусировки по времени следует находить из решения дифференциального уравнения  $dL/L + d\theta/\text{tg} \theta = 0$ .

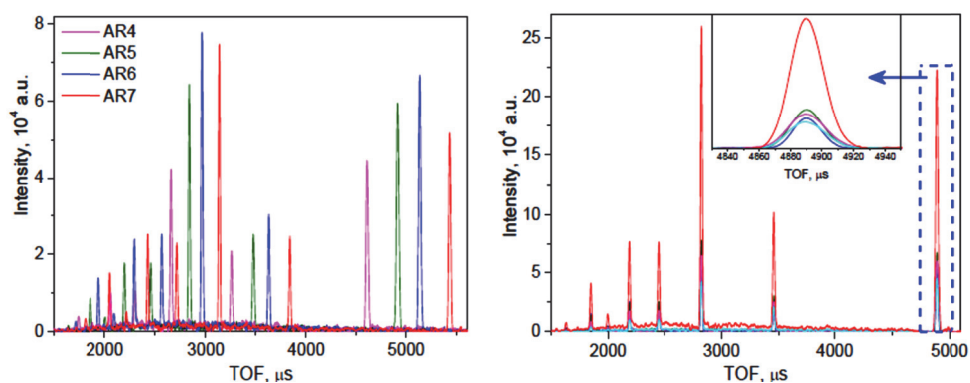


**Рис. 12.5.5.** Многосекционный детектор ASTRA (дифрактометр FSD, реактор ИБР-2). Поверхность каждой из секций удовлетворяет условию геометрической фокусировки.

Для детекторов очень большой площади используется метод комбинированной *электронно-геометрической фокусировки*, в котором

отдельные детекторные секции фокусируются геометрически, а суммарный спектр образуется после электронной фокусировки спектров, измеренных отдельными секциями. Пример такого детектора показан на рис. 12.5.5, а регистрируемые им дифракционные данные – на рис. 12.5.6.

Наиболее эффективно метод геометрической фокусировки может быть использован, если отношение пролетных расстояний от источника до образца и от образца до детектора не слишком сильно отличается от единицы. Если же первая пролетная база больше 40 м, его применение фактически невозможно.



**Рис. 12.5.6.** Слева: дифракционные спектры, измеренные отдельными секциями детектора ASTRA (с 4 по 7). Справа: результирующий дифракционный спектр, полученный после электронной фокусировки спектров, измеренных отдельными секциями.

## § 12.6. Детекторы с высоким пространственным разрешением

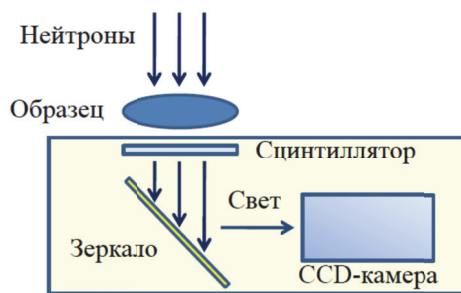
В некоторых методиках нейтронных исследований требуется регистрация места взаимодействия нейтрона с объектом с высоким пространственным разрешением. Типичным примером является метод нейтронной радиографии («Neutron imaging» в англоязычной литературе), в котором обычная величина разрешения должна составлять  $\sim 0.1$  мм, а при необходимости – 0.02 мм. Очевидно, что таких величин невозможно достигнуть в газовых детекторах из-за больших пробегов образующихся после реакции заряженных частиц. Резкого уменьшения длин пробегов можно достигнуть только в твердотельной активной среде, в качестве которой могут быть использованы фотографического типа пленки, сцинтилляторы, полупроводники, напыленные слои и др. На их основе удастся сконструировать 2D ПЧД, чувствительная площадь и размеры отдельных элементов (пикселей) которых оптимизируются под решаемую задачу. Как правило, эти два параметра находятся в линейной связи, т.е. увеличение площади детектора сопровождается соответствующим увеличением размера пикселя. Для регистрации нейтрона в твердотельной среде, в основном, используются реакции

взаимодействия с изотопами  ${}^6\text{Li}$  и  ${}^{10}\text{B}$  (иногда  ${}^{155}\text{Gd}$  и  ${}^{157}\text{Gd}$ ), в результате которых образуются вспышки света или электронные возбуждения. В некоторых случаях, помимо высокого пространственного разрешения и стандартных для любых нейтронных детекторов требований высокой эффективности и низкой чувствительности к  $\gamma$ -фону, к детекторам для радиографии предъявляются дополнительные требования большого динамического диапазона и малого времени считывания информации.

В начале 2000-х годов сформировались три основных направления в развитии твердотельных 2D ПЧД: сцинтилляционные экраны в сочетании с ПЗС-матрицами, детекторы фотографического типа (Imaging plate) с цифровым съемом информации, многопиксельные детекторы на основе микроканальных пластин. Как обычно, каждый из этих типов детекторов имеет какие-то свои достоинства и недостатки.

Наиболее универсальными являются детекторы с регистрацией экспериментальных данных с помощью видеокамеры на базе ПЗС-матрицы (ПЗС – прибор с зарядовой связью или CCD – charge-coupled device – в англоязычной литературе). Схема такого детектора для регистрации спектров пропускания показана на рис. 12.6.1. В качестве сцинтиллятора, как правило, используется  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  экран, преобразованное в свет изображение изучаемого объекта регистрируется CCD-камерой.

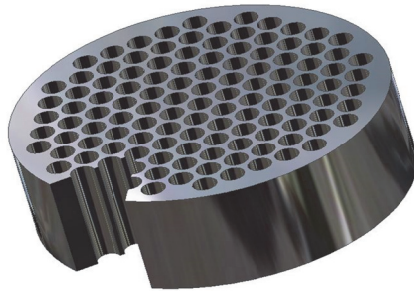
Поскольку ПЗС-матрицы весьма чувствительны к радиации, камера выводится из прямого пучка путем отражения света от зеркала. Линейный размер чувствительной области CCD-детектора, т.е. сцинтиллятора, может варьироваться в очень широких пределах – от 40 до 400 мм. С помощью фокусирующей оптики свет доставляется в CCD-камеру подходящего размера. Линейный размер ее пикселя, как правило, должен быть в  $\sim 1000$  раз меньше размера сцинтиллятора, например, при экране размером  $100 \times 100$  мм разрешение CCD-камеры должно составлять 0.1 мм. Такой уровень пространственного разрешения вполне достижим и достаточен для большинства радиографических задач. Разрешение зависит еще и от свойств сцинтиллятора и при правильном его подборе может составлять около 0.05 мм.



**Рис. 12.6.1.** Схема детектора с видеокамерой, используемого для регистрации радиографических изображений. Свет отражается от зеркала для выведения видеокамеры из пучка нейтронов.

Примерно такое же пространственное разрешение можно получить с помощью детектора фотографического типа (Image plate или IP-детектор), представляющим собой фотопластинку, с наложенным на нее конвертором, поглощающим нейтроны и образующим электроны, которые и формируют фотографическое изображение в люминофоре фотопластинки. В качестве конверторов используются такие элементы, как Gd или Dy, в которых при захвате нейтрона происходит процесс внутренней конверсии с передачей энергии одному из электронов атома. Получившееся изображение считывается лазерным сканером. Основным недостатком CCD- и IP-детекторов является сравнительно большое время считывания информации, которое для разных типов этих детекторов варьируется от 0.01 до 1000 секунд. Соответственно, они не могут быть использованы на спектрометрах, действующих по методу времени пролета, разрешение по времени которых обычно лучше, чем 0.001 секунды.

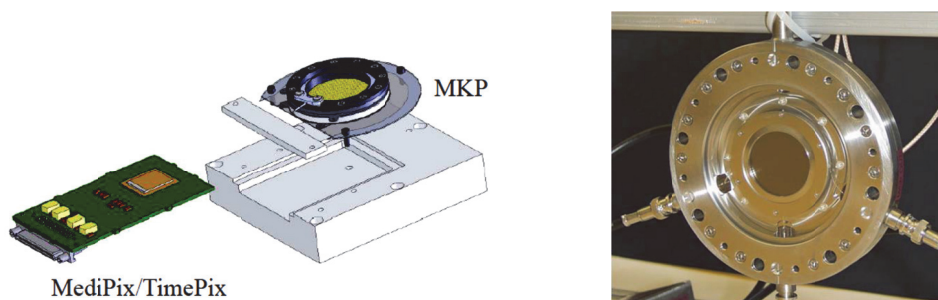
Комбинацию высокого пространственного ( $\Delta x \approx 15$  мкм) и рекордного временного ( $\Delta t \approx 1$  мкс) разрешения удастся реализовать в детекторах на основе микроканальных пластин (МКП). Первые сообщения о возможностях МКП для детектирования нейтронов появились еще в 1990-е годы [Fraser, Pearson, 1990], но их практическое использование началось заметно позже [Tremis et al., 2008], что, в основном, было связано со сложностями в съеме информации. Типичная МКП (MCP – microchannel plate в англоязычной литературе) для детектора нейтронов представляет собой стеклянный диск диаметром  $\sim 20$  мм и толщиной  $\sim 1$  мм с сотовой структурой цилиндрических пор, диаметр которых варьируется в пределах 5 – 10 мкм, с толщиной стенок между порами  $\sim 3$  мкм (рис. 12.6.2). В стекло внедряется изотоп  $^{10}\text{B}$ , в количестве достаточном для обеспечения 80% эффективности регистрации медленных нейтронов. К пластине прикладывается напряжение  $\sim 1000$  вольт и каждый ее канал действует как независимый электронный умножитель, производящий лавину вторичных электронов.



**Рис. 12.6.2.** Микроканальная пластина для MCP-детектора. Диск сделан из стекла с внедренным в него изотопом  $^{10}\text{B}$ , его толщина составляет 1 мм, диаметр – 20 мм, диаметр пор – около 10 мкм (масштабы не соблюдены).

Поскольку отдельные каналы разделены, то пространственная картина электронных импульсов на выходной части пластины сохраняет картину (изображение) нейтронов, падающих на ее переднюю поверхность. Необходимое усиление сигнала достигается накладыванием двух или трех МКП друг на друга, причем, только первая пластина содержит изотоп  $^{10}\text{B}$ , а остальные служат для усиления сигнала.

Основным достоинством МКП для детектирования нейтронов является возможность соединения ее с быстрой электроникой считывания, получившей название Medipix (или Timepix). Пачка МКП кладется непосредственно на пластину электроники считывания с зазором  $\sim 0.7$  мм, к которому прикладывается напряжение в несколько сот вольт. Размеры МКП соответствуют размеру микросхемы Medipix, которая обеспечивает съем информации со всех каналов со скоростью на уровне 0.5 МГц. Этой скорости достаточно для использования МКП-детектора на спектрометрах, действующих по методу времени пролета на импульсных источниках нейтронов. Очевидными отличиями МКП-детектора от многопроволочного 2D ПЧД являются его малая площадь ( $\sim 4$  см<sup>2</sup> вместо  $>1000$  см<sup>2</sup>) и высокое позиционное разрешение ( $\sim 15$  мкм вместо  $\sim 1.5$  мм). На рис. 12.6.3 показаны как выглядят основные составные части МКП-детектора и один из действующих детекторов.



**Рис. 12.6.3.** Слева: составные части МКП-детектора – набор микроканальных пластин (МКП) и плата электроники считывания. Справа: действующий МКП-детектор, произведенный компанией NOVA Scientific, диаметр его чувствительной области – 40 мм, позиционное разрешение – 40 мкм.

### Рекомендованная литература к главе 12

Калашников В.И., Козодаев М.С. (1966), *Детекторы элементарных частиц*, М.: Наука.

Knoll G.F. (2010), *Radiation detection and measurement*, 4rd ed., John Wiley & Sons.

### ЧАСТЬ III. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДЫ НЕЙТРОНОГРАФИИ

В Части I (§ 1.3 и 6.1) было показано, что нейтрон, проникая в среду, испытывает несколько различных взаимодействий, основными из которых являются сильное и электромагнитное. Первое из них проявляется, если нейтрон взаимодействует с ядром, поэтому его еще называют ядерным. Магнитное дипольное взаимодействие возникает между магнитным моментом нейтрона и магнитным моментом атома, складывающимся из спиновых и орбитальных моментов электронов. Кроме рассеяния, возможно поглощение (абсорбция) нейтрона ядром с последующим испусканием  $\gamma$ -квантов, нейтрона с начальной или измененной энергией, протона или  $\alpha$ -частицы и другими ядерными превращениями (распадами). Рассеяние нейтронов может быть упругим или неупругим, а каждый из этих типов рассеяния еще и когерентным или некогерентным. В современной нейтронографии в экспериментах с конденсированными средами используются почти все перечисленные типы взаимодействия медленных нейтронов с веществом.

Эффекты, возникающие при ядерном, упругом, когерентном рассеянии нейтронов на кристалле, принято называть *брэгговской дифракцией*. С ее помощью можно получить информацию о расположении атомов в пространстве и соответствующий метод называют *структурной нейтронографией*. Он аналогичен рентгеновскому структурному анализу, но имеет многочисленные особенности, определяемые спецификой взаимодействия нейтронов низких энергий с ядрами атомов. Если используется магнитное упругое, когерентное рассеяние нейтронов, то может быть получена информация о типе и симметрии магнитной структуры кристалла, а также о направлении и величине магнитных моментов атомов. Этот экспериментальный метод называют *магнитной нейтронографией*. Установки, на которых изучается брэгговская дифракция, называются дифрактометрами.

Если ядерное, упругое, когерентное рассеяние нейтронов происходит на веществе, не имеющем дальнего порядка в расположении атомов (газы, жидкости, аморфные среды), то возможно определение статистических характеристик структуры (ближнего порядка), извлекаемых из корреляционных функций.

Как отдельные методы при использовании упругого когерентного рассеяния нейтронов принято выделять *малоугловое рассеяние* и *рефлектометрию*. Под малоугловым рассеянием понимается рассеяние нейтронов на крупномасштабных неоднородностях среды, например, на белковых макромолекулах в растворе. Неоднородностями являются любые включения в однородную среду, отличающиеся от нее средней величиной сечения рассеяния в большую или меньшую сторону. Название метода связано с тем, что при размерах неоднородностей  $\sim 100 \text{ \AA}$  и больше рассеяние медленных нейтронов сосредоточено в интервале углов до  $10^\circ$ . Малоугловое рассеяние относится к

структурным методам низкого разрешения, т.е. с его помощью может быть получена информация о каких-то геометрических характеристиках неоднородностей (размер, форма), тогда как положения отдельных атомов в них остаются неопределенными. Соответствующие установки принято называть спектрометрами малоуглового рассеяния.

Суть нейтронной рефлектометрии – в измерении зависимости коэффициента отражения нейтронов, падающих под очень малым углом,  $< 1^\circ$  (скользящее падение), на плоскую границу раздела сред, от переданного импульса. Это позволяет восстановить профиль ядерного или магнитного потенциала, связанного с соответствующими амплитудами рассеяния, вдоль нормали к поверхности на глубину до  $\sim 10^3 \text{ \AA}$ . Основным достоинством нейтронной рефлектометрии является возможность изучения структур пониженной размерности, среди которых могут быть магнитные среды, мягкие вещества (полимеры, коллоидные растворы и т.п.), а также биологические мембраны. Этим методом изучаются поверхности массивных тел (твердых и жидких), внутренние (скрытые) границы раздела в системах жидкость – твердое тело и т.д., тонкие пленки, нанесенные на подложки, или многослойные тонкопленочные структуры. Эксперименты по рефлектометрии нейтронов ведутся на рефлектометрах.

Методы нейтронографии, основанные на использовании любых видов неупругого рассеяния нейтронов, объединяются общим названием *нейтронная спектроскопия*. Когерентное ядерное неупругое рассеяние нейтронов на монокристалле позволяет измерить дисперсионные соотношения, т.е. зависимость частот коллективных мод (фононов) от волнового вектора. Соответствующее магнитное рассеяние дает возможность получить информацию о дисперсионных соотношениях для магнонов, т.е. коллективных возбуждениях магнитной (спиновой) системы вещества. Некогерентное неупругое рассеяние позволяет определить плотность фононных состояний (фононный спектр), если рассеяние происходит на поликристаллическом веществе, или диффузионные движения атомов, если изучается жидкость. Для этих экспериментов используются спектрометры неупругого рассеяния.

Поглощение нейтронов является основным типом взаимодействия для получения нейтронных изображений. Метод абсорбционной нейтронной радиографии позволяет получить информацию о внутренней структуре материала или изделия с разрешением  $\sim 0.1 \text{ мм}$  и лучше. Современная модификация метода – *нейтронная томография* – дает возможность восстанавливать трехмерную структуру сложных изделий.

В качестве общего названия для любых установок, на которых изучаются перечисленные типы рассеяния нейтронов на веществе, используется термин *нейтронный спектрометр*. Итак, к ним относятся дифрактометры, рефлектометры, спектрометры малоуглового и неупругого рассеяния и радиографические станции.

Слово «спектр» – составная часть термина спектрометр – очень многозначное. Поначалу оно использовалось в оптике для обозначения распределения цветов, возникающих при разложении белого света на компоненты с разными длинами волн. С возникновением рассеяния нейтронов, как экспериментального метода, появилась нейтронная спектроскопия – исследование зависимости сечения взаимодействия нейтронов с атомными ядрами от энергии нейтронов. Соответственно, в нейтронной физике спектром стали называть зависимость интенсивности рассеянных или поглощенных нейтронов от энергии. Зависимость интенсивности рассеянных нейтронов от угла, измеряемую в дифракционных экспериментах с монохроматическим пучком нейтронов обычно называли «нейтронограммой». Однако с появлением импульсных источников интенсивность рассеянных нейтронов, в том числе и в дифракционных или малоугловых экспериментах, т.е. при упругом рассеянии, стали измерять как функцию энергии нейтронов. Соответственно, вместо нейтронограммы стали использоваться термины дифракционный (или малоугловой) спектр. Далее, для простоты и определенности, термин «спектр» будет применяться для обозначения зависимости интенсивности рассеянных нейтронов от какой-то переменной (энергии, длины волны нейтрона, угла рассеяния, переданного импульса) независимо от того, каким методом эта зависимость получена.

В последующих главах этой части рассмотрены принципы, которые необходимо знать при постановке эксперимента с помощью той или иной методики (от дифракции до радиографии) и устройство основных типов перечисленных выше нейтронных спектрометров.

**Таблица III.1.** Соотношения между величинами, характеризующими эксперимент по рассеянию нейтронов. Основные формулы для вычислений, из которых следуют остальные:  $E = mv^2/2$ ,  $E = kT$ ,  $E = \hbar\omega$ ,  $E = (\hbar^2/2m) \cdot (2\pi/\lambda)^2$ , где  $k = 8.6173 \cdot 10^{-5}$  эВ·К<sup>-1</sup> – постоянная Больцмана,  $\hbar = h/2\pi = 1.05457 \cdot 10^{-27}$  эрг·с =  $6.5821 \cdot 10^{-16}$  эВ·с – постоянная Планка,  $m = 1.6749 \cdot 10^{-24}$  г – масса нейтрона. Для вычисления времени и волнового вектора следует использовать формулы:  $t = 2\pi/\omega$ ,  $k = 2\pi/\lambda$ . При комнатной температуре ( $T = 293$  К):  $E = 0.0252$  эВ,  $v = 2198$  м/с,  $\omega = 38.35 \cdot 10^{12}$  с<sup>-1</sup>,  $\lambda = 1.80$  Å.

Величина	$E$ , эВ	$v$ , м/с	$T$ , К	$\omega$ , с <sup>-1</sup>	$\lambda$ , Å
$E$ , эВ	$E=E$	$E=0.5226 \cdot 10^{-8} \cdot v^2$	$E=T/11604$	$E=6.582 \cdot 10^{-16} \cdot \omega$	$E=0.08181/\lambda^2$
$v$ , м/с	$v=13832.9 \cdot E^{1/2}$	$v=v$	$v=128.41 \cdot T^{1/2}$	$v=3.549 \cdot 10^{-4} \cdot \omega^{1/2}$	$v=3956.04/\lambda$
$T$ , К	$T=11604 \cdot E$	$T=0.6065 \cdot 10^{-4} \cdot v^2$	$T=T$	$T=7.638 \cdot 10^{-12} \cdot \omega$	$T=949.34/\lambda^2$
$\omega$ , с <sup>-1</sup>	$\omega=0.1519 \cdot 10^{16} \cdot E$	$\omega=7.938 \cdot 10^6 \cdot v^2$	$\omega=0.1309 \cdot 10^{12} \cdot T$	$\omega=\omega$	$\omega=1.247 \cdot 10^{14}/\lambda^2$
$\lambda$ , Å	$\lambda=0.2860/E^{1/2}$	$\lambda=3956.04/v$	$\lambda=30.81/T^{1/2}$	$\lambda=1.115 \cdot 10^7/\omega^{1/2}$	$\lambda=\lambda$

В описании экспериментов по рассеянию нейтронов используется некоторый набор величин, характеризующих отдельный нейтрон (энергия,



волновой вектор, длина волны, скорость), совокупность нейтронов (температура нейтронного газа) и рассеивающую нейтроны систему (температура, передаваемая при рассеянии энергия) и др. Соотношения между основными величинами такого рода представлены в таблице III.1. Как характеристика энергии квазичастиц обычно используется частота  $\omega = E/\hbar$ , которую иногда выражают в единицах  $[\text{см}^{-1}]$  как  $\omega/c$ , где  $c = 2.998 \cdot 10^{10}$  см/с – скорость света.

## ГЛАВА 13. ДИФРАКЦИЯ

### § 13.1. Общие замечания

Дифракционный метод анализа атомной структуры вещества сформировался в начале 20-го века после открытия в 1912 году явления дифракции рентгеновских лучей на кристаллах. Возможность дифракции нейтронов на кристаллах (брэгговского отражения) была продемонстрирована в 1936 году, т.е. на 24 года позднее открытия дифракции рентгеновских лучей. Первые «настоящие» нейтронные дифракционные эксперименты удалось провести только в конце 1940-х годов, после того как были построены первые ядерные реакторы, т.е. отставание от рентгеновских работ составило около 40 лет. Тем не менее, благодаря тому, что общие принципы дифракции рентгеновских лучей и нейтронов на кристаллах практически одинаковы, удалось быстро адаптировать весь накопленный в рентгеновском структурном анализе опыт.

В самом конце 1940-х годов центром нейтронных дифракционных исследований стал Ок-Ридж (Oak Ridge, США), где был построен ядерный реактор с возможностью работы на выведенных пучках нейтронов. Именно в экспериментах, выполненных в Ок-Ридже, в основном будущем лауреатом Нобелевской премии Клиффордом Шаллом были впервые наблюдаемы [Shull et al., 1948] изотопические эффекты в дифракции нейтронов и подтверждена [Shull, Smart, 1949] гипотеза о существовании антиферромагнитного упорядочения в кристаллах.

Почти одновременно с работами по дифракции нейтронов в Ок-Ридже начались исследования на реакторе ВЕРО в Харуэлле (Англия), который был одним из первых реакторов, введенных в эксплуатацию (в 1948 г.) за пределами США. В Харуэлле выполнил свои первые работы один из классиков в области дифракции нейтронов Дж.Е. Бэкон (G.E. Bacon), который сосредоточился на исследованиях монокристаллов. Им в 1950 г. был построен «*двухкристальный спектрометр*» специально предназначенный для исследований монокристаллов и написан (вместе с К. Lonsdale) первый обзор по дифракции нейтронов [Bacon, Lonsdale, 1953]. В этом обзоре содержались минимальные теоретические сведения по ядерному и магнитному рассеянию нейтронов, формулы для расчета интенсивностей дифракционных пиков от моно- и поликристаллов, справочный материал, необходимый для практической работы по структурному анализу

кристаллов (данные по когерентным длинам рассеяния и др.), а также примеры нейтронного структурного анализа кристаллов.

В Советском Союзе начало применения рассеяния нейтронов для исследований конденсированных сред, в первую очередь методом дифракции, относится к концу 1950-х годов, когда были введены в строй нейтронные реакторы ИРТ в Москве (Курчатовский институт) в 1957 году и ВВР-М в Гатчине (Петербургский институт ядерной физики АН СССР) в 1959 году. О ранних этапах развития дифракции нейтронов можно прочитать в историческом обзоре Р.П. Озерова [Озеров, 1997].

На исследовательских стационарных реакторах для дифракционных экспериментов реализуется классический вариант работы с монохроматическим пучком нейтронов, который по существу копирует метод рентгеновской дифракции. Однако, как отмечалось во ВВЕДЕНИИ, в нейтронографии есть возможность существенно другой организации эксперимента, а именно, с использованием непрерывного по энергии спектра от пульсирующего источника и метода времени пролета (Time-of-Flight, TOF-метод) для определения энергии нейтрона. Скорость тепловых нейтронов невелика, и измеряя время пролета нейтроном определенного расстояния, нетрудно определить его энергию или длину волны используя соотношение де Бройля.

Идея использования TOF-метода для исследования кристаллических структур была высказана П. Эгельстафом в докладе на Всемирном конгрессе кристаллографов в 1954 г. и затем развита Б. Бурасом с сотрудниками [Buras, Lesiejewicz, 1963]. Сначала была сделана попытка его реализации на реакторе мощностью 2 Мвт в Сверке (Польша), но светосила оказалась достаточной лишь для демонстрации правильности идеи. В 1963 г. эксперименты были перенесены в ОИЯИ (Дубна, Россия), где в 1960 году был введен в действие пульсирующий реактор ИБР, и, по существу, явились первыми реальными экспериментами, показавшими работоспособность метода [Нитц и др., 1964].

Вскоре после первых экспериментов в Сверке и Дубне метод дифракции нейтронов по времени пролета начал быстро распространяться в мире. Этому способствовало создание в конце 1960-х годов импульсных источников нейтронов на базе электронных ускорителей в США, Японии и Великобритании. Полученный опыт позволил к середине 1980-х годов создать мощные импульсные источники нового поколения, основанные уже на протонных ускорителях с мишенью из тяжелого металла (Spallation Neutron Sources, SNS). А в ОИЯИ (Дубна) в 1984 году был построен высокопоточный импульсный реактор ИБР-2, работающий на средней мощности 2 МВт. Экспериментальные возможности на SNS и на ИБР-2 были не хуже, а в чем-то и лучше, чем на мощных стационарных реакторах, и нейтронная дифрактометрия по времени пролета окончательно утвердилась в качестве одного из основных методов изучения структуры вещества на атомном уровне. Более подробно исторические аспекты развития дифракционного TOF-метода рассмотрены в обзоре [Аксенов, Балагуров, 2016]. В

настоящее время классическая нейтронная дифракция с монохроматическим пучком и TOF-дифракция рассматриваются как методики с взаимно дополнительными возможностями, совместное применение которых зачастую позволяет решать особенно сложные задачи.

Главы с описанием дифракции нейтронов обязательно присутствуют в монографиях по рассеянию нейтронов, таких как [Турчин, 1963], [Гуревич, Тарасов, 1965], [Furrer et al., 2009], [Carpenter, Loong, 2015], но современная специализированная литература по дифракции нейтронов практически отсутствует. Из русскоязычных книг можно упомянуть лишь монографию [Нозик и др. 1979] и учебные пособия [Балагуров, 2017], [Пирогов, Сёмкин, 2020]. По случаю 50-летия с момента демонстрации дифракции нейтронов в 1986 был выпущен юбилейный сборник [Васон, 1986], содержащий описание ряда первых нейтронных дифракционных экспериментов. Описание дифракции нейтронов на поликристаллах содержится в монографии [Kisi, Howard, 2008].

### § 13.2. Постановка задачи и предмет исследования

Наиболее общей задачей исследования структуры вещества на атомном уровне с помощью коротковолнового излучения является извлечение информации о распределении когерентной длины рассеяния  $b(\vec{r})$  из экспериментально измеренной интенсивности рассеянного излучения  $I(\vec{q})$ , связанных соотношением:

$$I(\vec{q}) \sim |f(\vec{q})|^2 \sim \left| \int b(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r} \right|^2. \quad (13.2.1)$$

Здесь  $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$  – вектор рассеяния,  $\vec{k}_0$  и  $\vec{k}_1$  – волновые вектора нейтрона до и после рассеяния,  $f(\vec{q})$  – амплитуда рассеянной волны,  $\vec{r}$  – координата точки внутри объекта, на котором происходит рассеяние нейтрона. Длина рассеяния,  $b(\vec{r})$ , в (13.2.1) может относиться как к рассеянию на ядрах атомов, так и на их магнитных моментах. Предполагая, что рассеяние упругое, т.е.  $|\vec{k}_0| = |\vec{k}_1| = 2\pi/\lambda$ ,

где  $\lambda$  – длина волны нейтрона, из векторного треугольника  $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$  для модуля вектора рассеяния можно получить:  $q = 4\pi \cdot \sin(\theta/2)/\lambda$ , где  $\theta$  – угол рассеяния.

Степень разрешимости общей задачи зависит от нескольких факторов, главным из которых является наличие дальнего порядка в структуре. Под дальним порядком подразумевается наличие строгой периодичности в расположении атомов или ориентации их магнитных моментов. Строгая периодичность обязательно нарушается вследствие ограниченности кристалла в пространстве, из-за наличия дефектов, колебательного движения атомов и по некоторым другим причинам. Тем не менее, для появления вполне определенных дифракционных

эффектов достаточно, чтобы корреляция положений атомов или ориентации их магнитных моментов сохранялась хотя бы на расстояниях  $\sim 100 \text{ \AA}$ .

Наилучшим образом условия пространственной периодичности выполняются в «хороших» монокристаллах и для них задача решается максимально полно – достигается высокая степень точности в определении функции  $b(\vec{r})$ , которая легко может быть связана с положениями всех атомов структуры. Более того, современные методы структурного анализа зачастую позволяют определить структуру монокристалла *ab initio*, т.е. без знания каких-либо предварительных данных. В случае поликристаллического вещества ситуация усложняется из-за усреднения по ориентациям кристаллитов и возникающего перекрытия дифракционных пиков. Поэтому стандартная постановка задачи при исследовании поликристаллов состоит в уточнении уже известной структуры и изучении влияния на нее различных внешних факторов.

Дальнейшее нарушение степени дальнего порядка ведет к снижению подробности извлекаемой информации. Например, при исследовании монокристаллов глобулярных белков, таких как гемоглобин, разрешение в реальном пространстве, как правило, оказывается недостаточным для точной фиксации положения отдельных атомов, можно «разглядеть» лишь группировки атомов, например, общий ход  $\alpha$ -спиралей в молекуле белка. Для веществ без дальнего порядка, например, для макромолекул в растворах удастся получить только некоторые сведения об их геометрической форме, а в случае жидкостей и стекол – только некоторые статистические характеристики.

Итак, дифракция коротковолнового излучения (рентгеновского, синхротронного или нейтронного) на кристалле позволяет определить его структуру с точностью до положения отдельных атомов, и в этом случае говорят о решении задачи «высокого» пространственного разрешения. Наоборот, если речь идет только о геометрических или статистических характеристиках объекта, то разрешение является «низким». В случае высокого разрешения естественным образом выделяются две большие темы – задачи, связанные с моно- или поликристаллами. Как эксперимент, так и последующий анализ полученных дифракционных данных различаются для этих двух тем настолько существенно, что их описание излагается в отдельных монографиях. Подробное изложение общих принципов структурного анализа монокристаллов с помощью дифракции рентгеновских лучей, сопровождаемое многочисленными примерами, содержится в книге [Giacovazzo, 2011]. То же самое, но для случая поликристаллов, можно найти в книге [Pecharsky, Zavalij, 2009]. Поскольку значительная часть изложенного в этих книгах материала не зависит от типа излучения и в равной степени относится и к дифракции нейтронов, то к ним можно обратиться для выяснения многочисленных деталей структурного анализа моно- и поликристаллов.

При рассеянии излучения на произвольном объекте, как правило, не возникает проблем при решении *прямой задачи* – расчете эффектов рассеяния по

известным структурным и динамическим характеристикам объекта. Например, по известным координатам атомов легко может быть рассчитан модельный дифракционный спектр. Далее будет обосновано, что в случае дифракции на монокристаллах (а иногда и на поликристаллах) возможно решение и *обратной задачи*, т.е. структура кристалла может быть однозначно определена по измеренным интенсивностям дифракционных пиков. Основанием этому является не особенность метода, а уникальность объекта, а именно, наличие в кристаллах дальнего порядка в расположении рассеивающих центров.

### § 13.3. Формализм описания дифракции нейтронов на кристаллах

Как известно (см. любой курс кристаллографии, напр. [Шаскольская, 1976] или [Вайнштейн, 1979]), трехмерная периодичность (*трансляционная симметрия*) кристалла позволяет выбрать три периода в качестве некопланарных базисных векторов и построить на них параллелепипед, называемый элементарным параллелепипедом или *элементарной ячейкой*. Очевидно, что такими ячейками пространство может быть заполнено без промежутков. Элементарная ячейка определена, если задан базис  $\{\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}\}$ , т.е. длины базисных векторов и углы между ними:  $a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$ , который часто задают в виде базиса  $\{\vec{a}_i\}$ : длины  $a_i$  и углы  $\alpha_i$ , где  $i = 1, 2, 3$ . Вершины элементарных ячеек (пересечения ребер, узлы) образуют трехмерную *пространственную (кристаллическую или прямую) решетку*, на которой может быть определен вектор  $\vec{t}$ , называемый вектором трансляции:

$$\vec{t} = n_1\vec{a}_1 + n_2\vec{a}_2 + n_3\vec{a}_3 = \sum_i n_i\vec{a}_i = n_i\vec{a}_i, \quad (13.3.1)$$

где  $n_1, n_2, n_3$  – некоторые целые числа. В этой формуле (и везде далее) использовано стандартное правило, согласно которому по повторяющемуся индексу предполагается суммирование от 1 до 3, а знак суммы опускается.

В курсах кристаллографии показывается, что в трехмерном пространстве существует 14 вариантов элементарных ячеек, которые принято называть ячейками Браве. Расположение атомов в ячейке регулируется связями, определяемыми некоторым набором геометрических элементов симметрии (центром инверсии, плоскостями отражения, поворотными осями и др.), присущих конкретной кристаллической структуре. Число возможных комбинаций элементов симметрии, совместимых с трансляционной симметрией кристаллов, составляет 230, как было установлено в конце 19-го века российским кристаллографом Е.С.Федоровым и немецким математиком А.Шенфлисом. Каждая из этих комбинаций образует группу (в математическом смысле) и все вместе они называются *пространственными (или федоровскими) группами*.

При рассмотрении дифракции излучения на кристалле исключительно полезным математическим образом является *обратная решетка* кристалла, сопряженная с кристаллической решеткой и построенная на трансляциях  $\{\vec{b}_i\}$ :

$$\vec{b}_1 = [\vec{a}_2 \vec{a}_3] / V_c, \quad \vec{b}_2 = [\vec{a}_3 \vec{a}_1] / V_c, \quad \vec{b}_3 = [\vec{a}_1 \vec{a}_2] / V_c. \quad (13.3.2)$$

В (13.3.2)  $[\vec{a}_i \vec{a}_j]$  – векторное произведение,  $V_c = \vec{a}_1 [\vec{a}_2 \vec{a}_3]$  – объем кристаллической ячейки, переход от  $\vec{b}_1$  к  $\vec{b}_2$  и т.д. осуществляется циклической перестановкой индексов при  $\vec{a}_i$ . Пространство, в котором определена обратная решетка, называется *обратным пространством*, размерность длин в нем  $[\text{см}^{-1}]$ .

Вектор  $\vec{g} = h_1 \vec{b}_1 + h_2 \vec{b}_2 + h_3 \vec{b}_3 = h_i \vec{b}_i$ , где  $h_1, h_2, h_3$  – целые числа, называется *вектором обратной решетки*. Другим часто используемым видом записи является  $\vec{g} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^*$ . Тройки целых чисел  $(h_1 h_2 h_3)$  или  $(hkl)$  называются *индексами Миллера*. Легко убедиться, что для любого вектора  $\vec{g}$  обратной решетки и вектора трансляции  $\vec{t}$  прямой решетки их скалярное произведение  $(\vec{g}\vec{t}) = n$ , где  $n$  – некоторое целое число.

Следует заметить, что, как правило, в теоретических курсах физики твердого тела, в том числе и в § 3.3, где были рассмотрены основные положения теории брэгговской дифракции как нейтронно-оптического явления, в некоторые формулы вводится множитель  $2\pi$  и вектор  $\vec{g}$  оказывается в  $2\pi$  раз короче. Однако в структурном анализе именно вариант, предложенный выше, является стандартным и будет использоваться в этой главе. Как результат, некоторые формулы будут отличаться, например, в выражении для дифференциального сечения рассеяния аргументом  $\delta$ -функции становится выражение  $(\vec{q} - 2\pi\vec{g})$  вместо  $(\vec{q} - \vec{g})$ , как в § 3.3.

### 13.3.1. Положение и интенсивность дифракционных пиков

Квантовомеханическое рассмотрение дифракции нейтронов на кристалле в рамках кинематической теории (§ 3.3) предполагает решение уравнения Шредингера с псевдопотенциалом Ферми в первом борновском приближении. Борновское приближение дает возможность получить дифференциальное сечение рассеяния  $d\sigma/d\Omega$ , т.е. вероятность того, что нейтрон будет рассеян в элемент телесного угла  $d\Omega$ . Прямой расчет с псевдопотенциалом Ферми приводит к следующему выражению для упругого сечения рассеяния на кристалле с жестко закрепленными ядрами (без учета теплового движения):

$$d\sigma/d\Omega = \left\{ 1/N \sum_j \sum_{j'} b_j b_{j'} \exp[i\vec{q}(\vec{r}_j - \vec{r}_{j'})] \right\} \cdot \left\{ 1/M \sum_m \sum_{m'} \exp[i\vec{q}(\vec{t}_m - \vec{t}_{m'})] \right\}, \quad (13.3.3)$$

где  $b$  – когерентная длина рассеяния, суммирование по  $j$  и  $j'$  проводится внутри элементарной ячейки, включающей  $N$  атомов, суммирование по  $m$  и  $m'$  проводится по всем  $M$  элементарным ячейкам, из которых состоит кристалл,  $\vec{t}_m$  – вектора трансляций. Сумму, входящую в первый сомножитель в (13.3.3) в

структурном анализе принято называть *структурным фактором* (иногда, структурной амплитудой) и обозначать как:

$$F = \sum_j^N b(\vec{r}_j) \exp(i\vec{q}\vec{r}_j). \quad (13.3.4)$$

Можно показать, что при  $M \rightarrow \infty$ , второй множитель в (13.3.3) превращается в  $(8\pi^3/V_c) \cdot \delta(\vec{q} - 2\pi\vec{g})$ , где  $V_c$  – объем элементарной ячейки,  $\vec{g}$  – вектор обратной решетки,  $\delta(\vec{x})$  – дельта-функция Дирака и, соответственно:

$$d\sigma/d\Omega = \sigma(\vec{q}) = (8\pi^3/V_c) \cdot |F|^2 \cdot \delta(\vec{q} - 2\pi\vec{g}). \quad (13.3.5)$$

Формула (13.3.5) является точной для идеальных кристаллов в рамках кинематической теории дифракции, но она имеет свои ограничения, связанные с предположением о строгой периодичности кристалла, отступления от которой требуют специального, более сложного, рассмотрения.

Наличие функции  $\delta(\vec{q} - 2\pi\vec{g})$  в (13.3.5), полученной в предположении бесконечных размеров кристалла по всем направлениям, означает, что сечение когерентного рассеяния отлично от нуля только при выполнении условия  $\vec{q} = 2\pi\vec{g}$ . Т.е. строгая периодичность структуры вносит важнейшую особенность в результат рассеяния – вся интенсивность сосредоточена в *узлах обратной решетки*, для попадания в которые необходимо выполнить условие:

$$\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0 = 2\pi\vec{g}_{hkl}, \quad (13.3.6)$$

причем  $|\vec{k}_0| = |\vec{k}_1|$ , т.к. рассеяние упругое. Еще одним исключительно важным следствием периодичности структуры кристалла является то, что для расчета структурного фактора, а, следовательно, интенсивности дифракционных пиков достаточно провести суммирование только по атомам, находящимся в одной элементарной ячейке кристалла. Их число может варьироваться от одного до нескольких сотен, а для кристаллов глобулярных белков – до нескольких тысяч, но в любом случае  $N$  много меньше полного числа атомов в кристалле, которое составляет  $\sim 10^{20}$ .

Рассмотрение ситуации для кристалла конечных размеров может быть проведено на основе (13.3.3), предполагая конечное число элементарных ячеек. Вычисления, проведенные для кристалла в виде параллелепипеда с числом элементарных ячеек  $K_i$  по направлению  $\vec{a}_i$ , приводят к формуле:

$$\sigma(\vec{q}) \sim (\sin^2 K_1 \Psi_1 / \sin^2 \Psi_1) \cdot (\sin^2 K_2 \Psi_2 / \sin^2 \Psi_2) \cdot (\sin^2 K_3 \Psi_3 / \sin^2 \Psi_3), \quad (13.3.7)$$

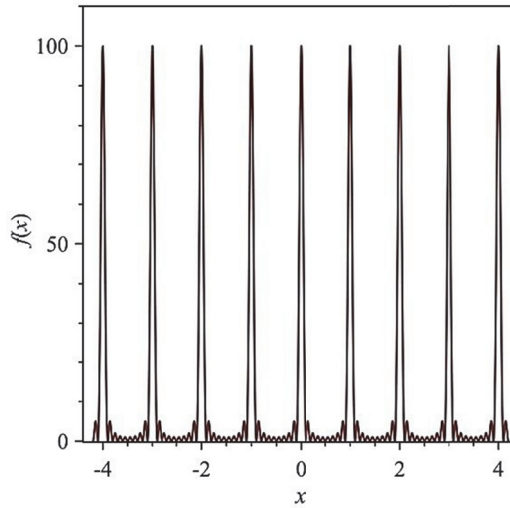
где  $\Psi_i = (\vec{q}\vec{a}_i)/2$ . Это формула впервые была получена М. фон Лауэ и носит название *интерференционной функции Лауэ*, ее развертка по одной из координат приведена на рис. 13.3.1. Отметим, что каждый из множителей достигает максимума, который равен  $K_i^2$  при выполнении условий  $(\vec{q}\vec{a}_i)/2 = h\pi$ , где  $h$  –

любое целое число. Ширина этих пиков вдоль каждого из направлений есть  $W \sim 1/K$ , а между основными пиками видны  $(K - 2)$  побочных максимума.

Из общего рассмотрения следует, что зависимость интенсивностей дифракционных пиков от переданного импульса определяется сверткой когерентного дифференциального сечения упругого рассеяния на кристалле,  $\sigma(\vec{q})$ , и функции разрешения дифрактометра:

$$I(\vec{q}) = \int R(\vec{q}' - \vec{q}) \sigma(\vec{q}') d\vec{q}'. \quad (13.3.8)$$

Сечение рассеяния кристалле бесконечных размеров выражается формулой (13.3.5), а функция разрешения  $R(\vec{q}_0, \vec{q})$  определяет вероятность измерения события, относящегося к точке  $\vec{q}$  обратного пространства, если дифрактометр настроен на измерение в точке  $\vec{q}_0$ . Функцию разрешения можно измерить, используя кристалл, для которого  $\sigma(\vec{q}) \sim \delta(\vec{q})$ . В некоторых случаях ее удается рассчитать, как, например, в случае дифрактометров для поликристаллов (см. § 13.4).



**Рис. 13.3.1.** Функция  $f(x) = (\sin Nx / \sin x)^2$  для  $N = 10$ . Для амплитуды и ширины основных пиков справедливо:  $A = N^2$ ,  $W \approx 1/N$ .

Формула (13.3.8) определяет профиль дифракционного пика в обратном пространстве. Для того, чтобы найти интенсивность пика необходимо выполнить интегрирование (суммирование)  $I(\vec{q})$  по всем  $\vec{q}$ :

$$I_{\text{int}} = \int I(\vec{q}) d\vec{q} = \iint R(\vec{q}' - \vec{q}) \sigma(\vec{q}') d\vec{q}' d\vec{q} = \int \sigma(\vec{q}') d\vec{q}', \quad (13.3.9)$$

т.к. предполагается, что интеграл  $\int R(\vec{q}' - \vec{q}) d\vec{q}$  нормирован на единицу. Эта величина, которую принято называть *интегральной интенсивностью*, не зависит от зачастую неизвестной функции разрешения и через сечение рассеяния



напрямую связана со структурным фактором. Анализ интегральных интенсивностей, измеренных в различных узлах обратной решетки, позволяет определить структуру кристалла (см. § 13.5).

### 13.3.2. Формула Брэгга-Вульфа

В кристаллографии и в дифрактометрии коротковолнового излучения широко используются понятия *кристаллографической* (узловой) *плоскости* и *межплоскостного расстояния*. Семейство кристаллографических плоскостей определяется как набор плоскостей, проведенных через узлы трехмерной кристаллической решетки. Все плоскости в семействе параллельны друг другу и расположены эквидистантно. Межплоскостное расстояние определяется как длина перпендикуляра, проведенного между соседними параллельными плоскостями. Следует отметить, что кристаллографические плоскости, расположение которых в кристаллической решетке задается *индексами Миллера* ( $hkl$ ), являются, также как кристаллическая решетка, понятием вспомогательным, воображаемым. Важным свойством обратной решетки является то, что вектор в обратном пространстве  $\vec{g}_{hkl} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^*$  перпендикулярен плоскости ( $hkl$ ) в прямом пространстве, а его абсолютная величина  $g_{hkl} = 1/d_{hkl}$ , где  $d_{hkl}$  есть межплоскостное расстояние. Соответственно, межплоскостное расстояние для произвольного набора индексов Миллера и произвольной симметрии решетки можно найти, вычислив модуль вектора  $\vec{g}_{hkl}$ , т.е.  $|\vec{g}_{hkl}| = \left[ (h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^*) \cdot (h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^*) \right]^{1/2}$ , и найдя затем его обратную величину.

Рассматривая равнобедренный векторный треугольник рассеяния и заменяя  $q$  на  $2\pi g_{hkl} = 2\pi/d_{hkl}$  в формуле  $q = 4\pi \cdot \sin(\theta/2)/\lambda$ , получаем соотношение:

$$2d_{hkl} \sin \theta_B = \lambda, \quad (13.3.10)$$

которое известно как *формула Брэгга-Вульфа*. В этой формуле угол  $\theta_B$ , являющийся половиной угла рассеяния, принято называть *углом Брэгга*. Интерпретация формулы (13.3.10), основанная на рассмотрении отражения волн от кристаллографических плоскостей, изложена в § 3.3.

### 13.3.3. Дифракция как фурье-преобразование структуры

Делая в формуле (13.3.4) замену  $\vec{q} = 2\pi\vec{g}$ , получаем:

$$F(\vec{g}) = \sum_j^N b(\vec{r}_j) \exp(2\pi i \vec{g} \vec{r}_j), \quad (13.3.11)$$

что является разложением в ряд Фурье периодической функции  $b(\vec{r})$ . Может быть выполнено обратное преобразование Фурье:

$$b(\vec{r}) = \sum_{hkl} F(\vec{g}_{hkl}) \cdot \exp(-2\pi i \vec{g}_{hkl} \vec{r}), \quad (13.3.12)$$

где  $b(\vec{r})$  удобно рассматривать как непрерывную функцию в объеме элементарной ячейки (распределение длины рассеяния),  $\vec{g}_{hkl}$  – дискретный набор векторов обратной решетки кристалла,  $\vec{r}$  – любой вектор в элементарной ячейке. Анализ функции  $b(\vec{r})$  – положений и величин ее максимумов – позволяет определить тип и координаты атомов кристалла, т.е. решить структурную задачу.

В общем случае структурные факторы  $F_{\vec{g}}$  являются комплексными величинами, т.е.  $F_{\vec{g}} = |F_{\vec{g}}| \cdot \exp(i\varphi_{\vec{g}})$ , где  $\varphi_{\vec{g}}$  – фаза структурного фактора. Соответственно, для вычислений с использованием (13.3.12) необходимо знать как модули, так и фазы структурных факторов. Модули этих величин определяются с помощью (13.3.5) из измеренных интенсивностей дифракционных пиков, но информацию о фазах в стандартном дифракционном эксперименте получить не удастся. Это обстоятельство составляет так называемую «*фазовую проблему*» структурного анализа. Для ее решения приходится использовать косвенные расчетные методы.

Общее соотношение (13.2.1) связывает амплитуду рассеянной волны,  $f(\vec{q})$ , с экспериментально измеряемой интенсивностью рассеянного излучения  $I(\vec{q})$ :

$$I(\vec{q}) \sim |f(\vec{q})|^2 \sim \iint b(\vec{r})b(\vec{r}') \exp(i\vec{q}(\vec{r} - \vec{r}')) d\vec{r}d\vec{r}'. \quad (13.3.13)$$

Здесь можно выполнить замену переменной  $\vec{r}' = \vec{r} + \vec{u}$  и получить:

$$I(\vec{q}) \sim \iint b(\vec{r})b(\vec{r} + \vec{u}) \exp(-i\vec{q}\vec{u}) d\vec{r}d\vec{u} = \int G(\vec{u}) \exp(-i\vec{q}\vec{u}) d\vec{u}, \quad (13.3.14)$$

где  $G(\vec{u}) = \int b(\vec{r})b(\vec{r} + \vec{u}) d\vec{r}$  есть парная корреляционная функция (пространственная), определяющая вероятность обнаружения частицы в точке  $\vec{r}$ , если какая-то другая частица находится в начале координат. В кристаллографии  $G(\vec{u})$  принято называть функцией межатомных расстояний или функцией Паттерсона. Она активно используется в структурном анализе кристаллов, помогая, в частности, решать фазовую проблему. С помощью обратного преобразования Фурье для корреляционной функции получаем:

$$G(\vec{r}) \sim \int I(\vec{q}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{q}, \quad (13.3.15)$$

т.е.  $G(\vec{r})$  может быть рассчитана непосредственно из экспериментальных данных по интенсивностям дифракционных пиков.

Итак, формулы, связывающие амплитуду и интенсивность рассеянной волны с распределением длины рассеяния и корреляционной функцией, являются преобразованиями Фурье. Справедливы обратные преобразования Фурье, позволяющие найти распределение длины рассеяния или корреляционную функцию, если проведен дифракционный эксперимент, измерены интенсивности

брегговских пиков, из них найдены модули структурных факторов и каким-либо образом рассчитаны их фазы.

#### 13.3.4. Форма узлов обратной решетки

Уже упоминалось, что с увеличением числа элементарных ячеек, в пределе при  $M \rightarrow \infty$  для суммы в (13.3.3) справедливо:

$$\sum_m^M \exp(-i\vec{q}\vec{t}_m) \rightarrow \delta(\vec{q} - 2\pi\vec{g}), \quad (13.3.16)$$

где  $\vec{g}$  – вектор обратной решетки. Действительно, делая замену  $\vec{q} = 2\pi\vec{g}$ , для суммы получаем:

$$\sum_m^M \exp(-2\pi i\vec{g}\vec{t}_m) = \sum_m^M \exp(-2\pi i n) \rightarrow \infty \text{ при } M \rightarrow \infty.$$

Т.е. для кристалла с большим числом элементарных ячеек сумма в (13.3.16) и, соответственно, форма узлов обратного пространства обладают свойствами  $\delta$ -функции Дирака. Для кристалла конечных размеров в виде параллелепипеда  $\delta$ -функция должна быть заменена на интерференционную функцию Лауэ. Рассмотрим, как изменится форма узлов, если число ячеек в кристалле невелико, а его форма произвольна.

Распределение длины рассеяния кристалла конечных размеров можно представить как произведение  $b(\vec{r}) = b_1(\vec{r}) \cdot b_2(\vec{r})$ , где  $b_1(\vec{r})$  – соответствует кристаллу бесконечных размеров,  $b_2(\vec{r}) = 1$  внутри реального кристалла и нулю вне его. В соответствии со свойствами фурье-преобразований  $F(b) = F(b_1 \cdot b_2) = \varphi_1 \otimes \varphi_2$ , где  $\varphi_1(\vec{q})$  и  $\varphi_2(\vec{q})$  – фурье-образы функций  $b_1(\vec{r})$  и  $b_2(\vec{r})$ :

$$\varphi_1(\vec{q}) \sim F(\vec{g}_{hkl}) \cdot \delta(\vec{q} - 2\pi\vec{g}_{hkl}), \quad \varphi_2(\vec{q}) \sim \int b_2(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) dV. \quad (13.3.17)$$

Вычисление свертки  $\varphi_1 \otimes \varphi_2$  дает:

$$f(\vec{q}) = \int \varphi_1(\vec{q}' - \vec{q}) \varphi_2(\vec{q}') d\vec{q}' = F(\vec{g}_{hkl}) \cdot \varphi_2(\vec{q} - 2\pi\vec{g}_{hkl}), \quad (13.3.18)$$

т.е. вместо  $\delta$ -функции, определявшей точечный размер узлов обратной решетки, появилась функция  $\varphi_2(\vec{q} - 2\pi\vec{g}_{hkl})$ , которая имеет конечные размеры в обратном пространстве. Согласно еще одному свойству фурье-преобразований – размеры дифракционного изображения обратно пропорциональны размерам объекта по соответствующим направлениям, т.е., например, вытянутые по направлению  $\vec{c}$  в виде цилиндров кристаллы имеют узлы обратной решетки в виде дисков, лежащих в плоскости  $(\vec{a}^* \vec{b}^*)$ . Ширина узлов в обратном пространстве не зависит в этом случае от  $|\vec{g}|$ , и есть  $\Delta g = \text{const} = L_g \sim 1/L_r$ , где  $L_r$  – размер кристалла вдоль соответствующего направления. Сечение рассеяния при этом будет отлично от нуля в некоторой окрестности узлов обратной решетки.

### 13.3.5. Интенсивность дифракционных пиков

В разделе 13.3.1. было показано, что интегральная интенсивность дифракционного пика, т.е. его площадь или объем, при определенных условиях не зависит от функции разрешения и может быть записана как

$$I_{\text{int}} = \int I(\vec{q}) d\vec{q} = \int \sigma(\vec{q}) d\vec{q}, \quad (13.3.19)$$

где для дифференциального сечения рассеяния следует использовать формулу (13.3.5) или, в более общем случае кристалла конечных размеров:

$$\sigma(\vec{q}) = (8\pi^3/V_c) \cdot |F_{\vec{g}}|^2 \cdot \varphi(\vec{q} - 2\pi\vec{g}). \quad (13.3.20)$$

Здесь функция  $\varphi$  есть фурье-образ распределения длины рассеяния в координатном пространстве. Ее конкретный вид зависит от линейных размеров кристаллитов и их распределения по размерам, а также связан со степенью совершенства кристалла. Вычисление интеграла в (13.3.19) подробно рассмотрено в книгах [Нозик и др., 1979] и [Гуревич, Тарасов, 1965].

Интегральную интенсивность можно представить в виде произведения нескольких величин: падающего на кристалл потока нейтронов  $\Phi$ , квадрата модуля структурного фактора кристалла  $|F_{\vec{g}}|^2$ , некоторой функции  $Q_L$  (называемой фактором Лоренца), учитывающей способ сканирования узлов обратной решетки, и поправочных множителей  $A(\theta, \lambda)$  и  $y(\theta, \lambda)$ , с помощью которых учитываются эффекты *поглощения* и *экстинкции* излучения в кристалле:

$$I_{\text{int}}(\vec{g}) = \Phi \cdot V_s \cdot Q_L \cdot |F_{\vec{g}}|^2 \cdot A(\theta, \lambda) \cdot y(\theta, \lambda), \quad (13.3.21)$$

здесь еще учтен объем кристалла  $V_s$ . Фактор поглощения,  $A(\theta, \lambda)$ , и коэффициент экстинкции,  $y(\theta, \lambda)$ , зависят от угла рассеяния и длины волны и определяются для конкретных  $\theta$  и  $\lambda$ , при которых измерен дифракционный пик.

С учетом теплового движения атомов общий вид структурного фактора есть:

$$F_{\vec{g}} = \sum_j b_j \exp(2\pi i \vec{g} \vec{r}_j) \cdot \exp(-W_j), \quad (13.3.22)$$

где  $\vec{g}$  – вектор обратной решетки кристалла,  $\vec{r}_j$  – радиус-вектор  $j$ -го атома в элементарной ячейке кристалла,  $\exp(-W_j)$  – фактор Дебая-Валлера, учитывающий тепловые колебания  $j$ -го атома, сумма берется по всем атомам элементарной ячейки. Когерентные длины рассеяния  $b_j$ , могут относиться как к ядру, так и к магнитному рассеянию нейтронов.

Для дифрактометра с монохроматическим пучком  $\Phi = \Phi_0$  – некоторая константа с размерностью [н/см<sup>2</sup>/с], а фактор Лоренца записывается как:

$$Q_L(\theta_b) = \lambda_0^3 / (V_c^2 \cdot \sin 2\theta_b). \quad (13.3.23)$$

Для дифрактометра с полихроматическим («белым») спектром в (13.3.21) под  $\Phi$  подразумевается функция, называемая *эффективным спектром*

$$\Phi'(\lambda) = \Phi(\lambda) \cdot \eta(\lambda) \cdot \varepsilon(\lambda), \quad (13.3.24)$$

где  $\Phi(\lambda)$  – исходное (максвелловское) распределение нейтронов от источника, имеющее размерность  $[\text{н}/\text{см}^3/\text{с}]$  (см. § 10.2),  $\eta(\lambda)$  – определяется устройствами формирования пучка (нейтроноводом) на пролетной базе,  $\varepsilon(\lambda)$  – эффективность детектора. При работе с использованием TOF-метода фактор Лоренца записывается как:

$$Q_L(\lambda) = \lambda^4 / (V_c^2 \cdot 2 \sin^2 \theta_{B0}), \quad (13.3.25)$$

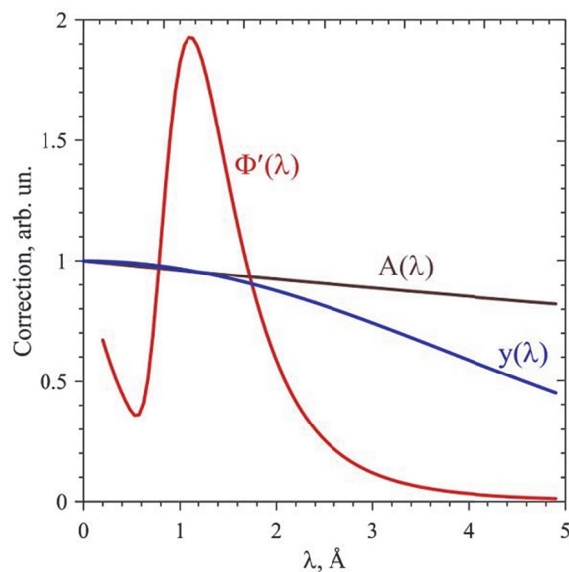
где  $\theta_{B0}$  – угол Брэгга, при котором зарегистрирован дифракционный пик. В обоих случаях интегральная интенсивность дифракционного пика, измеренного в узле  $\vec{g}$  обратной решетки, определяемая формулой (13.3.21) имеет размерность  $[\text{н}/\text{с}]$ . Для получения числа отсчетов в нее следует еще вставить нормирующую константу, в которую кроме некоторых неучтенных величин, типа телесного угла детектора, входит еще и время измерения дифракционного пика.

Фактор поглощения в (13.3.21) возникает при учете уменьшения интенсивности пучка вследствие поглощения или некогерентного рассеяния нейтронов в образце. Для образца произвольной формы фактор поглощения есть:

$$A = 1/V \int \exp(-\mu l) dV, \quad (13.3.26)$$

где  $V$  – объем образца,  $l$  – путь в образце, зависящий от формы образца и от координат точки рассеяния. Для многоатомного соединения  $\mu = \sum n_j \cdot \sigma_j$ , где сумма берется по всем атомам элементарной ячейки,  $\sigma_j = (\sigma_{\text{abs}} + \sigma_{\text{inc}})_j$  – учитывает поглощение нейтронов с сечением  $\sigma_{\text{abs}}$  и их некогерентное рассеяние с сечением  $\sigma_{\text{inc}}$ . Сечение некогерентного рассеяния  $\sigma_{\text{inc}}$  для всех ядер, кроме водорода, практически не зависит от длины волны. Для большинства изотопов сечение поглощения зависит от  $\lambda$  в соответствии с формулой (12.2.1), т.е.  $\sigma_{\text{abs}} = \sigma_0 (\lambda/\lambda_0)$ .

Экстинкция, так же как поглощение, приводит к постепенному уменьшению интенсивности пучка по мере его прохождения внутрь кристалла. Для удобства вычислений различают *первичную* и *вторичную* экстинкцию. Под первичной экстинкцией понимают ослабление пучка, происходящее в пределах одного мозаичного блока кристалла. Именно этот процесс является истинно когерентным, т.е. расчет коэффициента первичной экстинкции необходимо вести на уровне амплитуд волн и учитывать фазовые соотношения между ними. Вторичная экстинкция возникает при дополнительном рассеянии уже испытавшей дифракцию волны на каком-то другом мозаичном блоке кристалла. Существует несколько апробированных алгоритмов учета экстинкции, включенных в пакеты структурных программ. Все они основаны на решении системы дифференциальных уравнений в частных производных. Подробное изложение проблемы учета экстинкции в ходе структурного анализа можно найти в книге [Асланов, Треушников, 1985].



**Рис. 13.3.2.** Типичные зависимости от длины волны эффективного спектра нейтронов,  $\Phi'(\lambda)$ , фактора поглощения,  $A(\lambda)$ , и коэффициента экстинкции,  $y(\lambda)$ , для некоторых типичных значений параметров нейтронного дифракционного эксперимента. Подъем функции  $\Phi'(\lambda)$  при малых длинах волн связан с вкладом нетермализованных нейтронов.

Вследствие относительно слабого поглощения и не очень сильного некогерентного рассеяния нейтронов большинством элементов фактор поглощения (13.3.26), как правило, мало отличается от единицы, чем радикально отличается от фактора поглощения рентгеновских лучей. Исключение составляют водород с большим сечением некогерентного рассеяния, и некоторые изотопы, сильно поглощающие нейтроны, в частности,  ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^{10}\text{B}$ ,  ${}^{113}\text{Cd}$ ,  ${}^{149}\text{Sm}$ ,  ${}^{155}\text{Gd}$ ,  ${}^{157}\text{Gd}$ . Величина коэффициента экстинкции находится примерно на одном уровне для нейтронного и рентгеновского излучений. Следует, однако, учитывать, что размеры кристаллов для нейтронного структурного анализа, как правило, намного больше и учет экстинкции оказывает значительное влияние на точность получаемых результатов. В типичных случаях из функций  $\Phi'$ ,  $A$  и  $y$  наиболее сильно от длины волны зависит эффективный спектр нейтронов, изменения которого в рабочем интервале длин волн могут составлять сто и более раз (рис. 13.3.2). Именно по этой причине прецизионность структурных результатов, как правило, выше, если эксперимент проводится на дифрактометре с монохроматическим пучком.

#### § 13.4. Нейтронные дифрактометры

Организация эксперимента по дифракции нейтронов заметно различается для двух существующих типов исследовательских нейтронных источников.

Нейтронные дифрактометры на стационарных источниках фактически копируют схему рентгеновского дифрактометра. Из максвелловского распределения нейтронов по длине волны с помощью кристаллического монохроматора выделяется узкая (монокроматическая) линия с  $\Delta\lambda/\lambda \approx (2 \div 10) \cdot 10^{-3}$ , развертка дифракционного спектра ведется по углу рассеяния. Дифрактометры такого типа называют  $\lambda_0$ -дифрактометрами или *двухосными*, подразумевая возможность независимого вращения монохроматора и детектора вокруг вертикальных осей.

На импульсных источниках нейтронов на образец направляется пучок нейтронов со сплошным (*полихроматическим*) спектром, а длина волны нейтрона определяется с помощью метода времени пролета. Степень монохроматизации в этом случае зависит от ширины импульса источника и пролетного расстояния и составляет  $(5 \div 100) \cdot 10^{-4}$ . Установки этого типа принято называть дифрактометрами по времени пролета или *ТОФ-дифрактометрами*. В принципе, эту схему можно реализовать и на стационарном источнике нейтронов, используя механический прерыватель нейтронного пучка для образования нейтронных импульсов.

### 13.4.1. Основные параметры нейтронного дифрактометра

Основными параметрами любого дифрактометра являются его светосила и разрешающая способность, которые, как правило, находятся в антагонистическом соотношении, т.е. улучшение светосилы ухудшает разрешение и наоборот. В некоторых случаях важными параметрами оказываются доступный диапазон межплоскостных расстояний и уровень фона. Обсудим эти параметры на примере дифрактометра для поликристаллов.

В § 12.2 была приведена формула (12.2.4) для оценки загрузки детектора при изотропном рассеянии нейтронов на образце. Для оценки *светосилы* дифрактометра удобно использовать аналогичную формулу, а именно,

$$J_0 = \Phi_0 \cdot S \cdot (\Omega_d/4\pi), \quad (13.4.1)$$

где  $\Phi_0$  – поток нейтронов на образце ( $[\Phi_0] = \text{н}/\text{см}^2/\text{с}$ ),  $S$  – доступная для облучения площадь образца ( $[S] = \text{см}^2$ ),  $\Omega_d/4\pi$  – доля телесного угла, охватываемого детектором. Зная светосилу (ее размерность есть  $[J_0] = \text{н}/\text{с}$ ) можно оценить время эксперимента, необходимое для получения статистически значимого результата. Конкретные значения величин в (13.4.1) зависят от источника нейтронов, конструкции дифрактометра, детекторной системы и оптимизации дифрактометра по тому или иному параметру. Для  $\lambda_0$ -дифрактометра в качестве  $\Phi_0$  следует использовать поток монокроматических нейтронов на образце, для ТОФ-дифрактометра – полный поток в рабочем интервале длин волн.

В общем случае функция разрешения определена в 3D-пространстве. Иногда она может быть вычислена аналитически, но чаще оценивается численно. При изотропном рассеянии, как в случае поликристаллов, под разрешающей способностью принято понимать зависимость относительной ширины

дифракционного пика от межплоскостного расстояния, т.е.  $R(d_0) = (\Delta d/d_0)$ , где  $\Delta d(d_0)$  – полная ширина пика, измеренного при  $d = d_0$ , на половине его высоты. Зная разрешение можно оценить степень различимости дифракционных пиков, имеющих близкие  $d_{hkl}$ . Во избежание путаницы, стоит отметить, что функция разрешения определяет профиль дифракционных пиков, тогда как *разрешение* есть относительная ширина этой функции в конкретной точке  $d_0$ , т.е. число. Из контекста обычно ясно, что имеется в виду – профиль пика или зависимость его ширины от, например, угла рассеяния.

Дифференцируя формулу Брэгга-Вульфа и предполагая наличие некоторых неопределенностей в длине волны и угле Брэгга, распределенных в соответствии с функцией Гаусса, в первом приближении относительную ширину пика можно представить в следующем виде:

$$R(d_0) = (\Delta d/d_0) = \left[ (\Delta\lambda/\lambda_0)^2 + (\Delta\theta_B/\text{tg}\theta_{B0})^2 \right]^{1/2}, \quad (13.4.2)$$

где  $\Delta\lambda/\lambda_0$  – степень монохроматизации первичного пучка,  $\theta_{B0}$  – угол Брэгга, при котором измерен дифракционный пик,  $\Delta\theta_B$  – характеризует разброс в угле Брэгга, связанный с геометрическими неопределенностями процесса рассеяния. Разброс в угле Брэгга зависит от коллимации первичного пучка, размеров образца и угловых размеров детектирующего элемента.

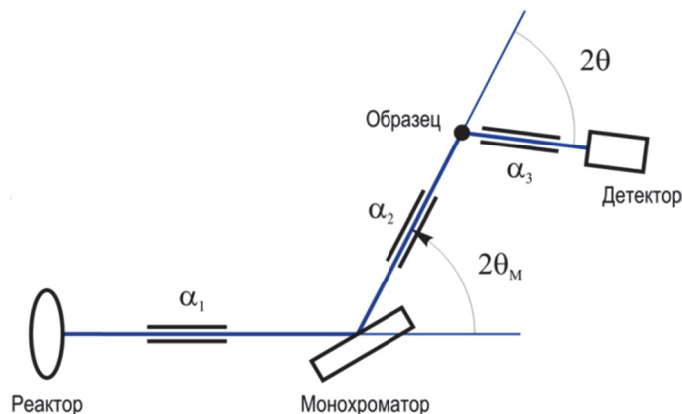
Диапазон измеряемых межплоскостных расстояний и уровень фона не коррелируют напрямую с разрешением и светосилой, а в основном определяются конструкцией дифрактометра. Например, в случае  $\lambda_0$ -дифрактометра диапазон углов рассеяния обычно ограничен значениями  $\theta = (10^\circ - 170^\circ)$ , а рабочая длина волны выбирается вблизи максимума максвелловского распределения, т.е.  $\lambda_0 = (1 - 2) \text{ \AA}$ . Из уравнения Брэгга-Вульфа следует, что диапазон  $d_{hkl}$  составит в этом случае  $(0.5 - 11) \text{ \AA}$ . Продвижение в сторону меньших или больших  $d_{hkl}$  возможно при использовании нейтронов от «горячего» или «холодного» замедлителя, соответственно.

#### 13.4.2. Дифрактометр на стационарном источнике нейтронов

Схема стандартного  $\lambda_0$ -дифрактометра приведена на рис. 13.4.1. Конструкция его основных узлов (коллиматоров, монохроматора, фильтра гармоник, детектора и т.д.) не имеет принципиальных отличий от узлов рентгеновских дифрактометров, они различаются, в основном, габаритами и материалом. Отличительными особенностями современных нейтронных  $\lambda_0$ -дифрактометров является возможность выбора конкретной конфигурации (тип монохроматора, длина волны, условия коллимации и т.д.), определяющей параметры эксперимента и использование 1D или 2D позиционно-чувствительных детекторов (ПЧД). Например, на дифрактометре D20 (ILL, Франция) [Hansen et al., 2008], действующем на реакторе в ILL, для первичной коллимации можно использовать коллиматоры с расходимостью от  $10'$  до  $27'$ , а в качестве монохроматора можно выбрать кристаллы Cu, ориентированный пиролитический



графит или Ge. Выбор монохроматора и угла отражения от него (от  $26^\circ$  до  $120^\circ$ ) определяют длину волны (она может изменяться от  $0.82 \text{ \AA}$  до  $2.41 \text{ \AA}$ ), поток нейтронов на образце и разрешающую способность. Конкретный выбор параметров позволяет на этом дифрактометре работать в режимах высокой светосилы или высокого разрешения.

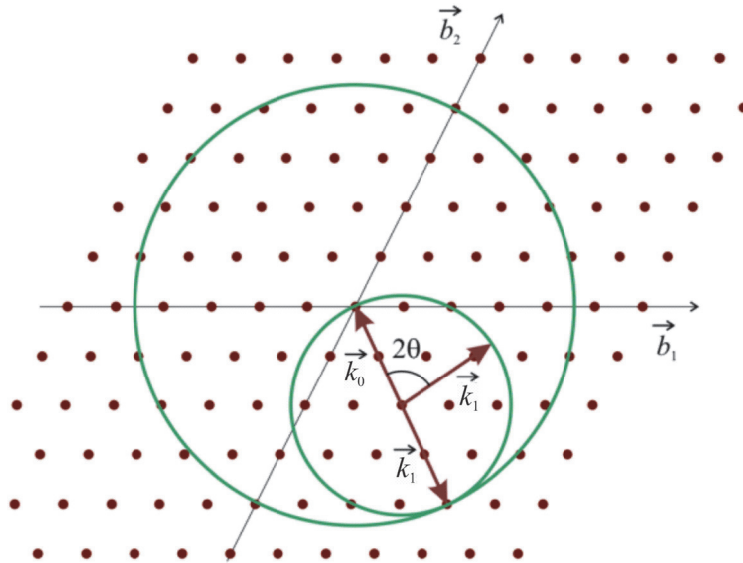


**Рис. 13.4.1.** Стандартная геометрия  $\lambda_0$ -дифрактометра для поликристаллов с одиночным детектором: коллиматор с параметром  $\alpha_1$  (угол расходимости) перед монохроматором, монохроматор с углом Брэгга  $\theta_M$ , коллиматор с параметром  $\alpha_2$  перед образцом, коллиматор с параметром  $\alpha_3$  перед детектором, регистрирующим рассеянные нейтроны в зависимости от угла рассеяния  $2\theta$ .

Из формулы (13.3.5) следует, что на  $\lambda_0$ -дифрактометре точечный детектор будет регистрировать дифракционную интенсивность, если  $\vec{k}_1 - \vec{k}_0 = 2\pi\vec{g}_{hkl}$ , где  $\vec{g}_{hkl}$  – один из векторов обратной решетки. Если изучается монокристалл, то для анализа ситуации удобно воспользоваться диаграммой Эвальда, которая изображает сечение обратного пространства в виде точек – узлов обратной решетки и векторный треугольник, как-то фиксированный относительно осей обратной решетки (рис. 13.4.2). При фиксированной ориентации кристалла относительно вектора  $\vec{k}_0$  (т.е. кристалл неподвижен) и изменяющемся угле рассеяния (т.е. вращается вектор  $\vec{k}_1$ ) конец вектора  $\vec{k}_1$  опишет в обратном пространстве сферу радиусом  $1/\lambda_0$  с центром в точке соединения векторов  $\vec{k}_0$  и  $\vec{k}_1$ . Она называется *сферой отражения* (сферой Эвальда), поскольку дифракция будет наблюдаться только для узлов обратной решетки, попавших на нее.

Если изменять не только угол рассеяния, но и ориентацию кристалла относительно  $\vec{k}_0$ , то получается сфера с радиусом  $2/\lambda_0$ , называемая *сферой ограничения*. Ее смысл в том, что дифракция может наблюдаться только для узлов обратной решетки, попавших внутрь этой сферы (рис. 13.4.2). Величину радиуса

для сферы ограничения легко получить и из формулы Брэгга-Вульфа, а именно, поскольку  $\sin\theta \leq 1$ , то  $d \geq \lambda_0/2$  или  $g \leq 2/\lambda_0$ . Отсюда следует, что для измерения дифракционных пиков с большими индексами Миллера (малые  $d$  или большие  $g$ ) длину волны следует уменьшать.



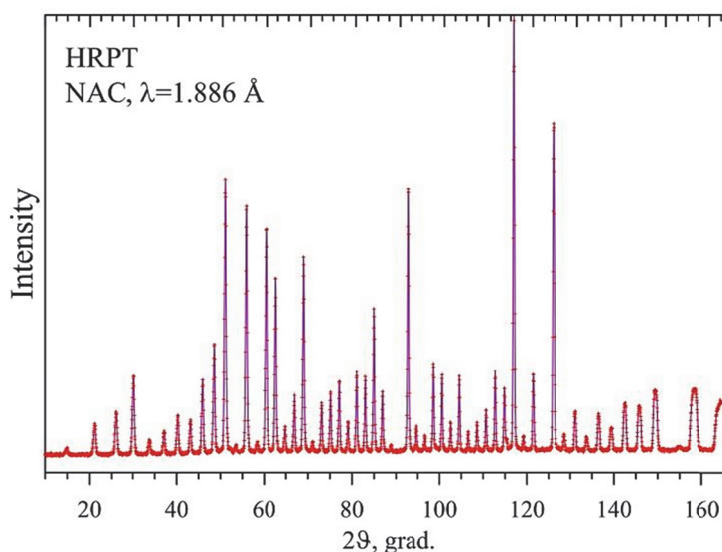
**Рис. 13.4.2.** Сферы отражения и ограничения. Изображено сечение  $(\vec{b}_1, \vec{b}_2)$  обратной решетки и волновые вектора падающих и рассеянных нейтронов. При фиксированной ориентации  $\vec{k}_0$  относительно осей координат кристалла изменение угла рассеяния  $2\theta$  обеспечивает регистрацию дифракционных пиков, попавших на сферу отражения (малый круг). Последовательные изменения угла рассеяния и ориентации кристалла обеспечивают регистрацию пиков во всех узлах обратной решетки, попавших внутрь сферы ограничения (большой круг).

Диаграммы Эвальда используются при анализе геометрических характеристик дифракционной картины, получаемой в эксперименте с монокристаллом. В случае поликристалла, состоящего из очень большого числа маленьких монокристаллов с произвольными ориентациями, обратное пространство можно представить как линию, на которую спроектированы все точки обратной решетки. Их расположение на линии определяется длинами векторов трансляции, т.е. величинами  $|\vec{g}_{hkl}|$ . Результат, полученный на  $\lambda_0$ -дифрактометре, принято представлять как зависимость интенсивности от угла рассеяния (рис. 13.4.3).

В работе [Cagliotti et al., 1958] было показано, что для стандартной геометрии  $\lambda_0$ -дифрактометра функциональная зависимость полной ширины дифракционного пика от угла рассеяния  $\theta$ , есть:

$$\Delta\theta = (U \operatorname{tg}^2 \theta_B + V \operatorname{tg} \theta_B + W)^{1/2}. \quad (13.4.3)$$

В этой формуле величины  $U$ ,  $V$  и  $W$  являются параметрами, которые могут быть измерены в эксперименте с модельным образцом или рассчитаны по формулам, приведенным в этой работе.

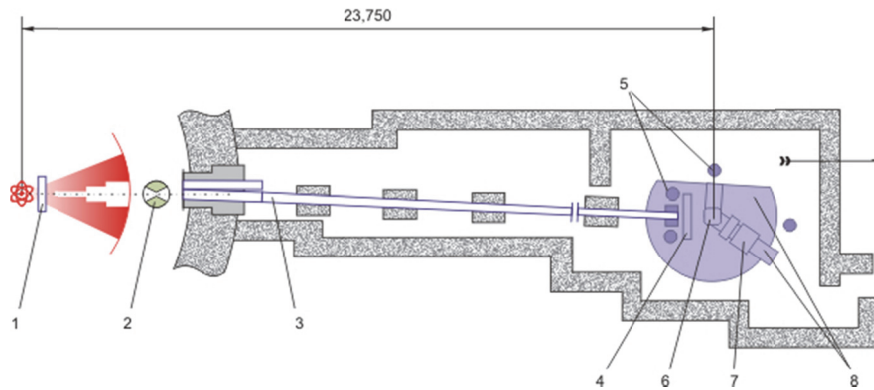


**Рис. 13.4.3.** Дифракционный спектр стандартного поликристаллического образца  $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{Ca}_3\text{F}_{14}$  (NAC), измеренный на  $\lambda_0$ -дифрактометре HRPT (PSI, Швейцария) при  $\lambda_0 = 1.886 \text{ \AA}$  как функция угла рассеяния.

### 13.4.3. Дифрактометр на импульсном источнике нейтронов

Общее устройство TOF-дифрактометра стандартно для нейтронных спектрометров, действующих по методу времени пролета (рис. 13.4.4): нейтроны от импульсного источника после замедления до тепловых энергий пролетают первичную базу, рассеиваются на образце и под некоторыми фиксированными направлениями регистрируются детекторами. Устройство анализа записывает спектр с разверткой по времени пролета нейтронов от замедлителя до детектора. Спектры от последовательных импульсов источника суммируются для накопления необходимой статистики.

Наиболее важным следствием перехода к непрерывному спектру и применения метода времени пролета для развертки дифракционной картины является многократное увеличение коэффициента использования нейтронов от источника, что связано с отсутствием предварительной монохроматизации. В результате, несмотря на то, что средний по времени поток нейтронов на существующих импульсных источниках значительно меньше, чем на стационарных –  $\Phi \approx 8 \cdot 10^{12}$  для ИБР-2 (ОИЯИ) и  $\Phi \approx 1.5 \cdot 10^{15}$  н/см<sup>2</sup>/с для HFR (ILL, Гренобль) – скорость накопления дифракционных данных оказывается сравнимой, а для некоторых специальных типов экспериментов она может быть существенно выше на TOF-дифрактометре.



**Рис. 13.4.4.** Схема TOF-дифрактометра RTD (ИБР-2, ОИЯИ). Цифрами обозначены: 1 – замедлитель, 2 – прерыватель для уменьшения фона между импульсами источника, 3 – зеркальный изогнутый нейтроновод, 4, 5, 7 – детекторы разного типа, 6 – стол с образцом, 8 – платформа с поворотным устройством для смены положения детектора. Пролетное расстояние от реактора до образца составляет 23.75 м.

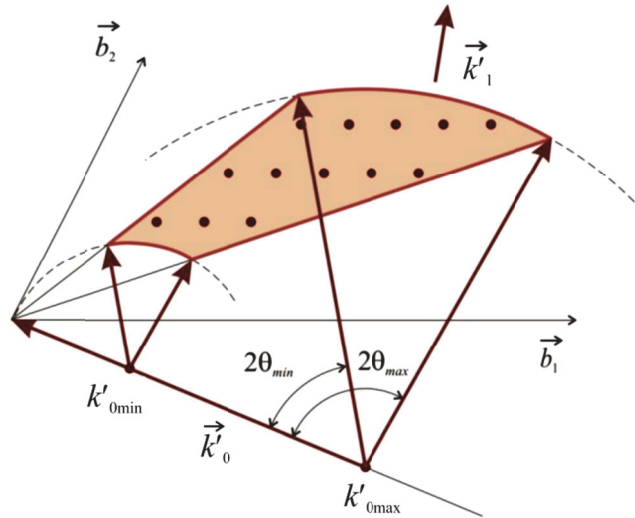
Диапазон используемых на TOF-дифрактометре длин волн, как правило, очень широк. Обычно это  $0.5 - 8 \text{ \AA}$ , хотя реально могут быть использованы как очень малые, до  $0.2 \text{ \AA}$ , так и очень большие, вплоть до  $20 \text{ \AA}$ , длины волн. Это позволяет с помощью даже небольшого числа детекторов перекрыть широкий диапазон по межплоскостным расстояниям. Действительно, всего два детектора, поставленные на углах рассеяния  $20^\circ$  и  $160^\circ$ , при работе в диапазоне  $0.5 \leq \lambda \leq 8 \text{ \AA}$  в соответствии с уравнением Брэгга-Вульфа дают возможность наблюдать интервал  $d_{hkl}$  от  $0.25$  до  $23 \text{ \AA}$ .

В обратном пространстве кристалла расположение узлов обратной решетки строго периодически по всем трем измерениям. Положения дифракционных пиков в пространстве экспериментальных координат зависят от конкретной постановки эксперимента. Для метода времени пролета положение пиков на шкале времени будет определяться условием  $t = C \cdot L \cdot 2d \sin \theta_B$ , где  $C = m/\hbar$ ,  $m$  – масса нейтрона,  $\hbar$  – постоянная Планка,  $L$  – полное пролетное расстояние от источника нейтронов до детектора. Эту формулу легко получить из формулы Брэгга-Вульфа, вспомнив, что  $\lambda = 2\pi/k$ ,  $k = 2\pi mv/\hbar$ ,  $v = L/t$ ,  $v$  – скорость нейтрона. Если время измерять в мкс, расстояние в м, а  $d$  в  $\text{\AA}$ , то  $C = 252.7785$  и

$$t = 505.557 \cdot Ld \sin \theta_B. \quad (13.4.4)$$

Важной особенностью TOF-дифрактометра является возможность вести измерения при фиксированном значении угла рассеяния. Наиболее существенным его недостатком является, как правило, меньшая, чем в случае монохроматического пучка, прецизионность получаемых данных. Это связано с необходимостью введения сильно зависящих от длины волны поправок при

переводе измеренных интенсивностей дифракционных пиков в структурные факторы.



**Рис. 13.4.5.** Сканирование обратного пространства на TOF-дифрактометре с помощью 1D ПЧД. Рабочий интервал волновых векторов ( $k'_{\min}$ ,  $k'_{\max}$ ). Детектор охватывает интервал углов рассеяния ( $2\theta_{\min}$ ,  $2\theta_{\max}$ ), соответственно, в этом интервале углов лежат направления векторов  $\vec{k}'_1$ . Регистрируются дифракционные пики, соответствующие узлам обратной решетки, попавшим внутрь сектора. На этом рисунке штрих означает деление на  $2\pi$ , т.е.  $k' = k'/2\pi$ .

В методе времени пролета длины векторов  $\vec{k}_0$  и  $\vec{k}_1$  не фиксированы, а непрерывно изменяются от  $\vec{k}_{\min}$  до  $\vec{k}_{\max}$ , которые соответствуют максимальной и минимальной длинам волн в спектре нейтронов от источника ( $\lambda_{\max}$  и  $\lambda_{\min}$ ). Значения  $\lambda_{\min}$  и  $\lambda_{\max}$  условно задаются некоторым минимальным уровнем интенсивности в максвелловском спектре нейтронов. В этом случае при использовании точечного детектора обратное пространство сканируется вдоль вектора  $\vec{g}$ , а при использовании 1D ПЧД – в некотором секторе в плоскости рассеяния (рис. 13.4.5). Если применяется двухкоординатный ПЧД, то показанный на этом рисунке сектор разворачивается еще и в вертикальной плоскости, т.е. реализуется наиболее общая схема трехмерного сканирования, причем без каких-либо поворотов кристалла или детектора.

Для TOF-дифрактометра формулу (13.4.2) следует переписать в виде:

$$R(d) = \left[ (\Delta t_0/t)^2 + (\Delta\theta_B/\text{tg}\theta_B)^2 + (\Delta L/L)^2 \right]^{1/2}, \quad (13.4.5)$$

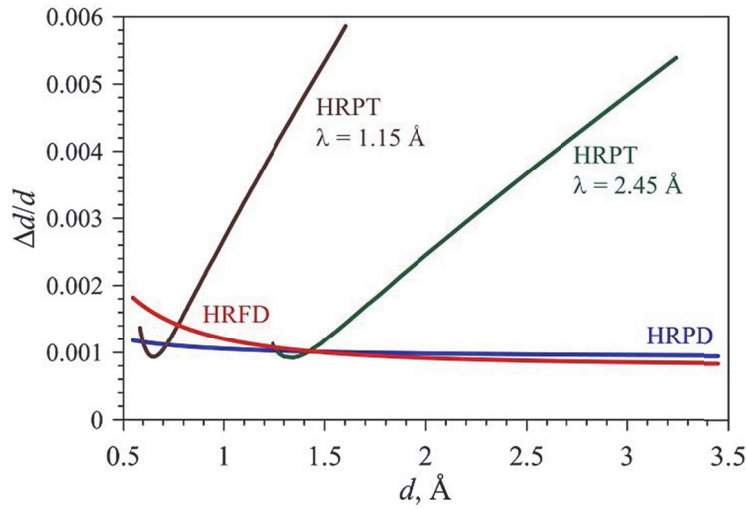
где  $t$  – полное время пролета от источника до детектора,  $\theta_B$  – угол Брэгга,  $L$  – полное пролетное расстояние от источника до детектора,  $\Delta t_0$  – ширина нейтронного импульса от источника,  $\Delta\theta_B$  включает все угловые неопределенности процесса рассеяния,  $\Delta L$  учитывает неопределенность пролетного расстояния, связанную, в основном, с конечными толщинами замедлителя и детектора. Как

обычно,  $\Delta$  означает полную ширину на половине высоты соответствующей функции распределения.

Первое слагаемое в (13.4.5) (обозначим его  $R_t$ ) можно записать так:

$$R_t = \Delta t_0 / t = \Delta t_0 / (252.778 \cdot L \lambda) = \Delta t_0 / (505.556 \cdot L d \sin \theta_B), \quad (13.4.6)$$

где величины  $\Delta t_0$ ,  $L$  и  $\lambda$  или  $d$  выражаются в мкс, м и  $\text{\AA}$ , соответственно. Ширина импульса  $\Delta t_0$  по-разному зависит от времени пролета на импульсных источниках с коротким или с длинным импульсом быстрых нейтронов. В первом случае при средних и больших длинах волн она пропорциональна  $\lambda$  и  $R_t$  не зависит от  $t$ . В втором случае  $\Delta t_0$  слабо зависит от  $t$ , т.е. в первом приближении  $\Delta t_0 = \text{const}$  и  $R_t \sim 1/d$ .

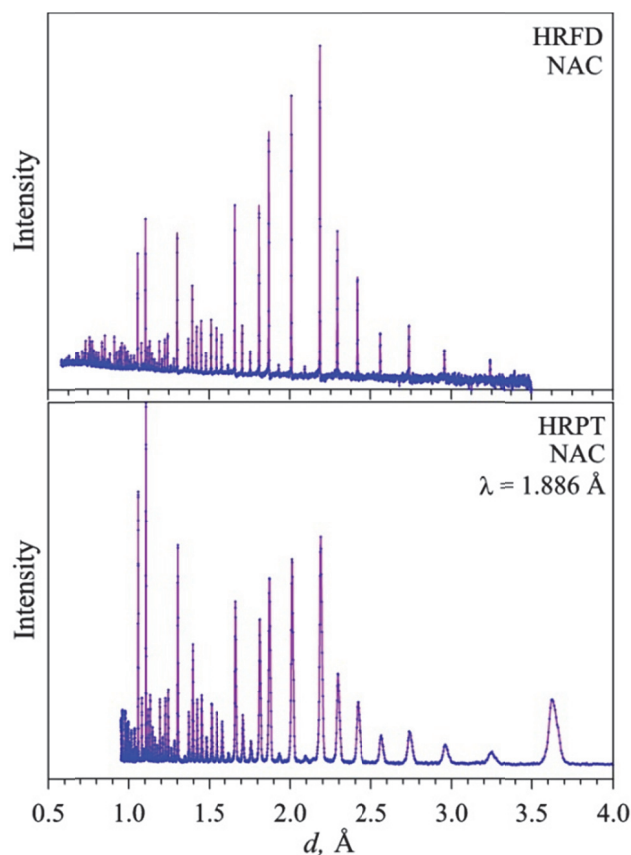


**Рис. 13.4.6.** Функции разрешения дифрактометров для поликристаллов: двух TOF-дифрактометров (HRFD и HRPD) и  $\lambda_0$ -дифрактометра HRPT для двух длин волн в зависимости от межплоскостного расстояния.

В угловую часть функции разрешения  $R_\theta = \Delta \theta_B / \text{tg} \theta_B$  в основном вносят вклад коллимация первичного пучка нейтронов, размеры образца и чувствительной области детектора. При рассеянии назад, т.е. при углах рассеяния близких к  $180^\circ$ , величина  $R_\theta$  может быть сделана весьма малой. Для дифрактометра высокого разрешения, т.е. с большим  $L$ , величина  $\Delta L/L$ , как правило, очень мала и, соответственно, вклад третьего слагаемого в (13.4.5) мал. В целом, разрешающая способность TOF-дифрактометров заметно слабее зависит от  $d_{hkl}$ , чем для  $\lambda_0$ -дифрактометров (рис. 13.4.6), что является их несомненным достоинством.

Для иллюстрации особенностей экспериментальных данных получаемых на  $\lambda_0$ - и TOF-дифрактометрах для поликристаллов, на рис. 13.4.7 показаны спектры, измеренные на установках HRPT – стационарный источник SINQ (PSI,

Швейцария) и HRFD – импульсный источник ИБР-2 (ОИЯИ, Дубна) и переведенные в одну шкалу (межплоскостных расстояний). Видно, что в них по-разному проявляются ограничения по доступному интервалу  $d_{hkl}$ : со стороны больших  $d$  для HRFD и, наоборот, со стороны малых  $d$  для HRPT. Ширины пиков, измеренных на HRFD, практически постоянны, тогда как в случае HRPT пики заметно уширяются в сторону больших  $d$  из-за различий в поведении функций разрешения. Кроме того, интенсивности дифракционных пиков по-разному зависят от  $d$ , что связано с влиянием фактора Лоренца. Можно сказать, что данные, получаемые на  $\lambda_0$ - и TOF-дифрактометрах, в некоторых аспектах являются взаимно дополнительными.



**Рис. 13.4.7.** Сравнение дифракционных спектров стандартного поликристаллического образца  $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{Ca}_3\text{F}_{14}$  (NAC), измеренных на дифрактометрах высокого разрешения HRPT ( $\lambda_0$ -дифрактометр) и HRFD (TOF-дифрактометр).

### § 13.5. Задачи, решаемые на нейтронных дифрактометрах

Дифракционные задачи исключительно разнообразны, как крайние случаи можно, например, назвать изучение структуры белка и микроструктуры стали.

Это разнообразие неизбежно приводит к необходимости специализации конструкции дифрактометров и их оптимизации по какому-то параметру (светосиле, разрешению, уровню фона) или по его настройке на работу в определенном интервале длин волн. Постепенно сформировалось около 10 разных типов дифракционных экспериментов, требующих специфической организации узлов и подбора параметров дифрактометра. Их особенности перечислены в таблице 13.5.1. В последующих параграфах рассмотрены некоторые основные типы нейтронных дифракционных экспериментов на кристаллах.

**Таблица 13.5.1.** Основные дифракционные задачи и требования к дифрактометрам, предназначенным для выполнения различных типов нейтронных экспериментов. Под средним или высоким разрешением понимаются величины на уровне  $\Delta d/d \sim 0.02$  или  $0.002$ , соответственно. Под обычным или большим диапазоном  $d_{hkl}$  понимаются интервалы  $0.7 - 5 \text{ \AA}$  или  $0.5 - 15 \text{ \AA}$ , соответственно.

Задача	Светосила	Разрешение	Диапазон, $d_{hkl}$	Детектор	Примеч.
Атомная структура, монокристалл	Средняя	Среднее	Обычный	2D ПЧД	
Атомная структура, поликристалл	Средняя	Высокое	Большой	Большой 1D ПЧД	
Магнитная структура, поликристалл	Средняя	Среднее	Большие $d_{hkl}$	Большой 1D ПЧД	$d_{\max} \sim 15 \text{ \AA}$
Эксперимент в реальном времени	Высокая	Среднее	Большой	Большой 1D ПЧД	
Высокое внешнее давление	Высокая	Среднее	Обычный	Большой 1D ПЧД	Малый фон
Длиннопериодные структуры	Средняя	Среднее	Большие $d_{hkl}$	2D ПЧД на малых углах	$d_{\max} \sim 60 \text{ \AA}$
Локальные искажения структуры	Высокая	Высокое	Малые $d_{hkl}$	Большой 1D ПЧД	$q_{\max} \sim 40 \text{ \AA}^{-1}$
Макронапряжения в материалах	Высокая	Высокое	Малые $d_{hkl}$	ПЧД при $2\theta \approx 90^\circ$	$\Delta d/d \sim 0.004$
Микроструктура материалов	Средняя	Высокое	Большой	Большой 1D ПЧД	
Кристаллографическая текстура	Средняя	Высокое	Большой	2D ПЧД	$\Delta d/d \sim 0.004$

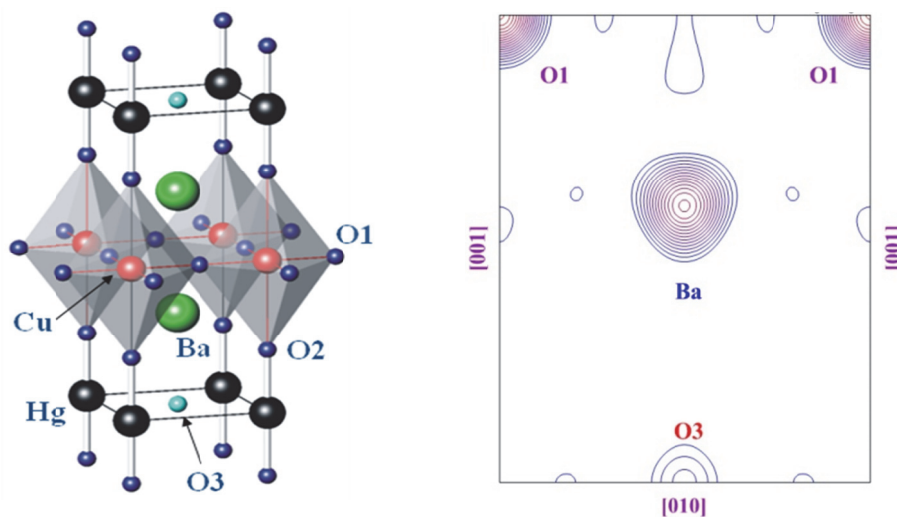
### 13.5.1. Структурный анализ монокристаллов

В § 13.3.3 было установлено, что структурные факторы дифракционных пиков,  $F(\vec{g}_{hkl})$ , и распределение когерентных длин рассеяния атомов в элементарной ячейке,  $b(\vec{r})$ , связаны друг с другом прямым и обратным



преобразованиями Фурье. В общем случае структурные факторы – комплексные числа, и для определения их фаз приходится использовать косвенные расчетные методы. Эти методы оказались вполне эффективными в рентгеноструктурном анализе кристаллов, но в случае нейтронов их эффективность невелика. Поэтому стандартным подходом является определение модели структуры в рентгеновском эксперименте, расчет по ней фаз нейтронных структурных факторов и их последующее уточнение.

Итак, для структурного анализа монокристалла необходимо измерить интегральные интенсивности в определенном количестве узлов обратной решетки. Для кристаллов низкой симметрии измерения интенсивностей выполняются для всех узлов в полусфере обратного пространства до некоторого  $g_{\max}$ . Для кристаллов с высокой симметрией кристаллической решетки этот объем можно сократить до 1/4 или даже до 1/8 полной сферы. Далее, с использованием формулы (13.3.21) интегральные интенсивности переводятся в модули структурных факторов, фазы которых рассчитываются по известной модели структуры, что позволяет по формуле (13.3.12) рассчитать распределение длин рассеяния в элементарной ячейке.



**Рис. 13.5.1.** Слева: изображение структуры  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$  с обозначениями атомов. Позиция O3 заполнена частично на величину  $\delta$ . Справа: фурье-синтез распределения длины рассеяния в сечении ( $x = 0.5$ ,  $0 \leq y \leq 1$ ,  $0 \leq z \leq 0.5$ ) элементарной ячейки (ось  $y$  идет горизонтально, ось  $z$  – вертикально). На фурье-синтезе видны относительно слабые ложные максимумы, в основном, связанные с конечностью числа структурных факторов, участвующих в суммировании.

Расчет  $b(\vec{r})$  принято называть «*построением фурье-синтеза структуры*». Пример такого построения показан на рис. 13.5.1 для высокотемпературного сверхпроводника  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ . Его атомная структура уже была определена по данным рентгеновского эксперимента, но под вопросом оставалось наличие в

позиции ОЗ дополнительного атома кислорода, количество которого определяет сверхпроводящие свойства соединения. Предполагалось, что  $\delta \approx 0.1$ , т.е. атом ОЗ присутствует в среднем в одной из 10 элементарных ячеек. На фурье-синтезе, построенном по данным нейтронного эксперимента, этот атом ясно виден. Уточнение фактора заполнения позиции дало величину  $\delta \approx 0.12$ .

На современных источниках нейтронов, как правило, действует не один универсальный дифрактометр для монокристаллов, а несколько специализированных. Основные различия связаны с характеристиками первичного пучка нейтронов (его температурой, наличием поляризации, степенью монохроматизации) и организацией детекторной системы. А основными решаемыми задачами являются анализ атомной и магнитной структур, распределения магнитной плотности, структурных и магнитных фазовых переходов.

### 13.5.2. Структурный анализ поликристаллов

В случае дифракции на поликристалле вместо совместного анализа интегральных интенсивностей отдельных дифракционных пиков проводится анализ профиля нейтронограммы, измеренной в широком интервале углов рассеяния или длин волн. Вводя функцию  $\varphi$ , описывающую профиль дифракционного пика, для интенсивности можно получить следующее общее выражение:

$$I(d) \sim \Phi(d) \sum_{hkl} j_{hkl} \cdot Q_L \cdot |F(g_{hkl})|^2 \cdot A(\theta, \lambda) \cdot \varphi(d_{hkl} - d), \quad (13.5.1)$$

где  $d$  – межплоскостное расстояние,  $\Phi$  – поток нейтронов на образце,  $j_{hkl}$  – фактор повторяемости кристаллографической плоскости,  $Q_L$  – фактор Лоренца. Здесь учтен фактор поглощения, а коэффициент экстинкции опущен, т.к. при дифракции на поликристалле она, как правило, несущественна. В (13.5.1) интенсивность спектра записана как функция межплоскостного расстояния, хотя в качестве переменной можно использовать угол рассеяния или время пролета. Конкретное выражение для фактора Лоренца, также как при рассеянии на монокристалле, свое для  $\lambda_0$ - и TOF-дифрактометров.

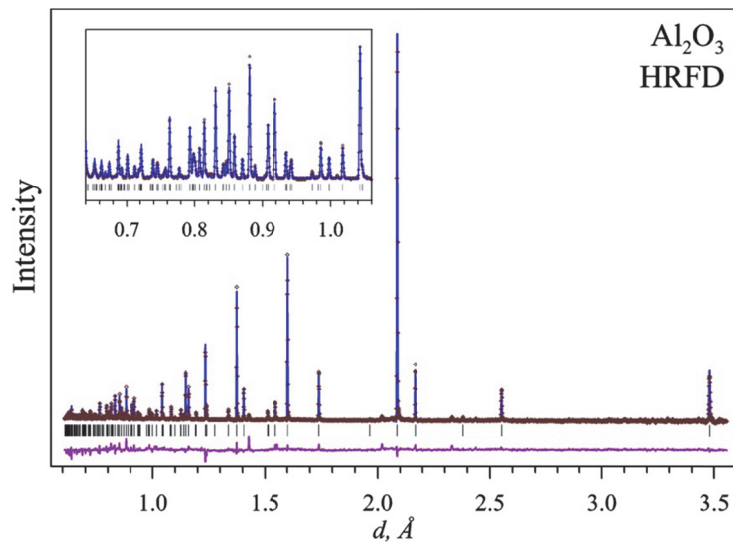
Метод анализа профиля нейтронограммы ввел в общую практику голландский физик Х.Ритвельд [Rietveld, 1969] и с 1978 года он получил официальное (рекомендованное Международным союзом кристаллографов) название – «метод Ритвельда». В этом методе предполагается, что измеряемый профиль дифракционного спектра может быть описан аналитической функцией, зависящей от экспериментальных и структурных переменных. Кроме того, считается, что начальные значения структурных параметров уже известны с достаточной точностью и речь идет только об их уточнении с помощью метода наименьших квадратов или каких-либо других процедур минимизации функционалов. Результат обработки представляется в виде графика,

включающего, в том числе разностную функцию, иногда нормированную на статистическую ошибку.

Функционал от параметров обычно записывается в виде:

$$\chi^2 = \sum_i \omega_i (I_{exp,i} - I_{cal,i})^2, \quad (13.5.2)$$

где  $\omega_i$  – вес  $i$ -й точки, координатой которой является переменная сканирования (угол рассеяния, время пролета или межплоскостное расстояние),  $I_{exp}$  и  $I_{cal}$  – экспериментальное и рассчитанное значения интенсивности, сумма берется по точкам измеренного спектра в каком-то интервале межплоскостных расстояний  $d_i$ . Расчет  $I_{cal}$  ведется по формуле (13.5.1), дополненной функцией, представляющей интенсивность фона. Параметрами, уточняемыми при минимизации функционала (13.5.2), являются наборы из факторов заполнения позиции, относительных координат и теплового параметра атомов,  $(n, x, y, z, B)_j$ , фоновая интенсивность (зачастую ее можно описать многочленом степени не выше четвертой) и параметры элементарной ячейки кристалла, которые входят в выражение для  $d_{hkl}$ .



**Рис. 13.5.2.** Дифракционный спектр стандартного поликристаллического образца  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , измеренный на HRFD и обработанный по методу Ритвельда. Показаны экспериментальные точки, рассчитанная кривая и разностная функция, нормированная на ошибку в точке. Вертикальные штрихи указывают рассчитанные положения дифракционных пиков.

Основой эффективности метода Ритвельда является то, что в нем достигается наименьший уровень корреляции между параметрами. Кроме того, он хорошо приспособлен для алгоритмизации и удалось быстро создать несколько удобных компьютерных программ. Наиболее популярными являются пакеты FullProf и GSAS, в которых реализованы возможности обработки спектров, измеренных на  $\lambda_0$ - и TOF-дифрактометрах, а также учет как ядерного, так и магнитного рассеяния. Для анализа с помощью метода Ритвельда дифракционных

спектров, измеряемых на HRFD, был разработан специализированный пакет MRIA [Zlokazov, Chernyshev, 1992], в котором есть возможность задания двухзнаковой модели для описания профиля пика, а сам профиль задается численно. В качестве иллюстрации, на рис. 13.5.2 показан результат обработки по методу Ритвельда с использованием программы MRIA измеренного на HRFD спектра. Разностная функция ( $I_{exp,i} - I_{cal,i}$ ), показанная в нижней части рисунка, флуктуирует около нуля, что говорит о хорошем соответствии между моделью и реальной структурой этого кристалла. Достижимая с помощью метода Ритвельда точность определения структурных параметров может быть очень высокой. Так, для структур среднего уровня сложности, т.е. с объемом элементарной ячейки  $200 - 500 \text{ \AA}^3$ , она может составлять  $\sim 0.0001 \text{ \AA}$  для параметров элементарной ячейки,  $\sim 0.001 \text{ \AA}$  для межатомных расстояний,  $\sim 0.05^\circ$  для валентных углов.

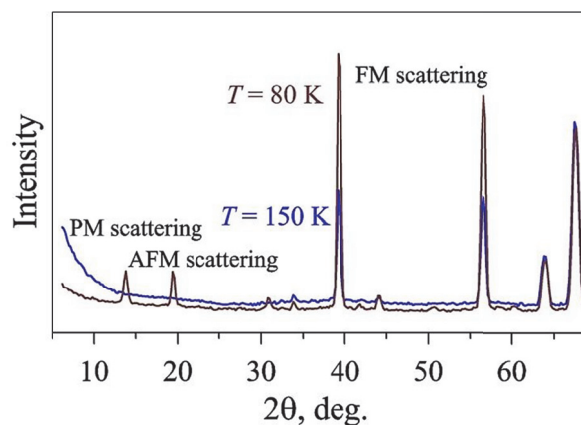
На современных дифрактометрах для поликристаллов в качестве детекторов обязательно используются широкоапертурные газовые или сцинтилляционные детекторы, рассмотренные в § 12.5 с телесным углом до нескольких стерadian. На TOF-дифрактометре детектор может состоять из нескольких секций, расположенных при разных средних углах рассеяния – больших ( $2\theta \approx 160^\circ$ ), средних ( $2\theta \approx 90^\circ$ ) и малых ( $2\theta \approx 30^\circ$ ). Это позволяет измерять спектр в необходимом интервале межплоскостных расстояний, а смещение интервала  $d_{hkl}$  в ту или иную сторону регулируется расположением дифрактометра на теплом или холодном источнике нейтронов.

### 13.5.3. Анализ магнитных структур кристаллов

Дипольное магнитное взаимодействие между магнитными моментами атома и нейтрона, рассмотренное в Главе 6, позволяет получать информацию о магнитной структуре кристалла, а именно, о типе, симметрии и периодах магнитного упорядочения, величинах и направлениях магнитных моментов атомов. Говорят, что кристалл обладает магнитной структурой или дальним магнитным порядком, если есть какая-либо закономерность в величинах и направлениях магнитных моментов атомов. В кристалле, находящемся в парамагнитном состоянии, дальний порядок в направлениях моментов отсутствует. В кристаллах с упорядоченными моментами выделяют тип коллинеарных магнетиков, к которым относят ферро- (ФМ), антиферро- (АФМ) и ферримагнитные состояния. Существует много вариантов неколлинеарных магнетиков, в которых магнитные моменты упорядочены некоторым сложным образом, например, по спирали. Периоды упорядочения неколлинеарных структур могут быть несоизмеримы с периодами кристаллической решетки. Схематические изображения основных типов магнитных структур можно найти, например, в [Изюмов и др., 1981].

Упорядочение магнитных моментов атомов, возникающее, как правило, при понижении температуры, может приводить к нескольким эффектам. Если периоды кристаллической и магнитной структуры совпадают, то возникает

дополнительный (магнитный) вклад в интенсивности дифракционных пиков. Если какие-либо периоды магнитной структуры больше, чем кристаллической, как это может быть в случае антиферромагнетика, то в нейтронограмме появляются дополнительные пики. Наконец, если периоды магнитной структуры несоизмеримы с кристаллическими, то рядом с основными (ядерными) дифракционными пиками возникают дополнительные пики, называемые сателлитами. Пример нейтронограммы кристалла с вкладами от ферро- и антиферромагнитных структур приведен на рис. 13.5.3.



**Рис. 13.5.3.** Дифракционные спектры соединения  $(\text{La}_{0.2}\text{Pr}_{0.8})_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ , измеренные при двух температурах. При 150 К дальний магнитный порядок отсутствует, магнитное рассеяние на атомах Mn некогерентно и проявляется только как парамагнитное рассеяние (PM) при малых углах рассеяния. При понижении температуры до 80 К магнитные моменты Mn упорядочились по направлениям, причем в объеме образца сосуществуют как FM, так и AFM фазы. FM-порядок проявился как увеличение интенсивности пиков при углах рассеяния  $39^\circ$  и  $57^\circ$ , AFM-порядок – как появление новых пиков при углах рассеяния  $13^\circ$  и  $19^\circ$ . В некоторых пиках (при  $2\theta_B > 60^\circ$ ) магнитного вклада нет.

Для магнитного структурного фактора коллинеарной структуры можно написать выражение аналогичное (13.3.22), а именно:

$$F_{\vec{g}, \text{mag}} = M_{hkl} \sum_j S_j \cdot \mu_j \cdot \exp(2\pi i \vec{g} \vec{r}_j) \cdot \exp(-W_j). \quad (13.5.3)$$

В этой формуле сумма берется по всем магнитным атомам в ячейке,  $M_{hkl} = |\sin \eta|$ ,  $\eta$  – угол между единичным вектором, определяющим направление магнитных моментов атомов  $\vec{m}$  и единичным вектором рассеяния  $\vec{e} = \vec{q}/q = \vec{g}/g$ . Кроме того, в формулу входят  $S_j$  – спин  $j$ -го атома в единицах  $\hbar$  в смысле максимальной проекции на ось квантования и величина  $\mu_j = 2e^2 \gamma / (m_e c^2) \cdot P_j(\vec{q})$ , в которой  $e$ ,  $m_e$  и  $c$  – мировые константы,  $\gamma = -1.913$  – аномальный магнитный момент нейтрона (в ядерных магнетонах),  $P_j(\vec{q})$  – магнитный формфактор  $j$ -го атома.

Появление в (13.5.3) магнитного формфактора связано с тем, что характерные размеры пространственного распределения магнитных электронов такого же порядка, что и длина волны нейтрона. Соответственно,  $P(\vec{q})$  является фурье-преобразованием от распределения магнитной плотности электронов в атоме (его вид показан на рис. 6.2.2). Подстановка констант приводит к  $\mu_j = 0.539P_j(q) \cdot 10^{-12}$  см, т.е. при малых  $q$  (при рассеянии вперед) абсолютная величина магнитного структурного фактора примерно такая же, как атомного.

Для неполяризованного пучка нейтронов ядерная и магнитная интенсивности просто складываются, т.к. интерференционный член исчезает вследствие равного присутствия положительного и отрицательного вкладов, т.е.

$$I_{hkl} \sim |F_{hkl,\text{nuc}}|^2 + |F_{hkl,\text{mag}}|^2. \quad (13.5.4)$$

Постановка «магнитного» нейтронного дифракционного эксперимента несколько отличается от «структурного». Прежде всего, следует учитывать, что магнитные формфакторы  $P(q)$  довольно быстро спадают с ростом  $q$ . Соответственно, интенсивности магнитных пиков на  $\lambda_0$ -дифрактометрах измеряются при сравнительно малых углах рассеяния, а на TOF-дифрактометрах – при сравнительно больших длинах волн. Поскольку в области малых  $q$  дифракционные пики от поликристалла расположены редко, то, как правило, очень высокого разрешения не требуется. В этом смысле дифрактометр, оптимизированный для изучения магнитной структуры, является дополнительным по своим параметрам дифрактометру, оптимизированному для изучения атомной структуры.

Для симметричного описания магнитных структур к стандартным кристаллографическим операциям, наборы которых образуют 230 пространственных групп симметрии, добавляется специфическая операция антисимметрии, с помощью которой направление магнитного момента изменяется на противоположное. Изначально в широкую практику операция антисимметрии была введена А.В.Шубниковым [Шубников, 1951], который рассмотрел с ее помощью смену цвета с белого на черный и введенные им (шубниковские) группы симметрии иногда называют черно-белыми. Вскоре после введения черно-белых групп симметрии было осознано, что они годятся и для описания магнитных структур, т.к. операция инверсии цвета похожа на операцию инверсии направления спина. Введение дополнительной операции симметрии естественно приводит к увеличению числа возможных комбинаций: число кристаллических решеток увеличивается с 14 до 36, число точечных групп – с 32 до 122, число пространственных групп – с 230 до 1651.

Альтернативный подход описания магнитной структуры кристаллов основан на теории неприводимых представлений (НП) пространственных кристаллографических групп. Он был предложен французским ученым Е.Берто [Bertaut, 1968], а до рабочих алгоритмов доведен в работах российских физиков под руководством Ю.А.Изюмова [Изюмов и др., 1981]. В этом методе вводится

разложение вектора магнитного момента по базисным функциям НП пространственной группы симметрии структуры кристалла. Поскольку неприводимое представление, по которому прошел фазовый переход, заранее неизвестно, то все возможные варианты проверяются в вариационной процедуре. Коэффициентов разложения по базисным функциям НП обычно немного (от 1 до 6), что способствует нахождению единственного решения.

После нахождения модели магнитной структуры, ее характеристики – параметры ячейки, величина и направление магнитных моментов – уточняются с использованием метода Ритвельда. Для этого в функционал от параметров расчетные интенсивности задаются в соответствии с (13.5.4). Пример такого анализа можно найти в работе [Pomjakushin et al., 2007], в которой изучались составы  $(\text{La}_{1-y}\text{Pr}_y)_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ , а измерения проводились на  $\lambda_0$ -дифрактометре HRPT.

#### 13.5.4. Анализ переходных процессов

Дифракция нейтронов активно используется для изучения *обратимых и необратимых* процессов в кристаллах. Под первыми понимается ситуация, когда один и тот же процесс можно повторить сколько угодно раз без нарушения целостности объекта исследования, что позволяет набрать необходимую статистику в дифракционном эксперименте. Примером может быть структурная перестройка в кристалле при переключении поляризации (электрической или магнитной) под действием внешнего поля. Для изучения таких процессов особенно интересной является возможность импульсного воздействия на образец, синхронизованного с импульсами источника нейтронов, что позволяет увеличить амплитуду внешнего поля до величин, не достижимых в стационарном режиме. Эта идея была подробно обсуждена в обзорной работе [Buras et al., 1964] и уже в 1968 году впервые в мировой практике на импульсном реакторе ИБР-1 (Дубна) был создан комплекс «Импульсная магнитная установка – TOF-дифрактометр». На нем была выполнена серия экспериментов с монокристаллом гематита,  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ , при амплитуде магнитного поля до 12 Тл, тогда как максимальные значения стационарных магнитных полей, используемых в то время в нейтронных экспериментах, не превышали 4.5 Тл. В дальнейшем, уже на реакторе ИБР-2 были достигнуты импульсные поля с амплитудой до 25 Тл и выполнены многочисленные исследования кинетики магнитных ориентационных переходов, спин-флоп переходов в антиферромагнетиках и др. [Нитц, 2001].

Типичным примером необратимого процесса, идущего только в одну сторону, является твердотельная химическая реакция. Для изучения необратимых процессов принципиальное значение имеет светосила нейтронного дифрактометра, так как необходимая статистика должна быть набрана за один «проход». В ходе эксперимента какой-либо внешний параметр (температура, влажность, электрическое поле и т.д.) постепенно изменяется в некотором заданном интервале значений. В качестве параметра может выступать и время,

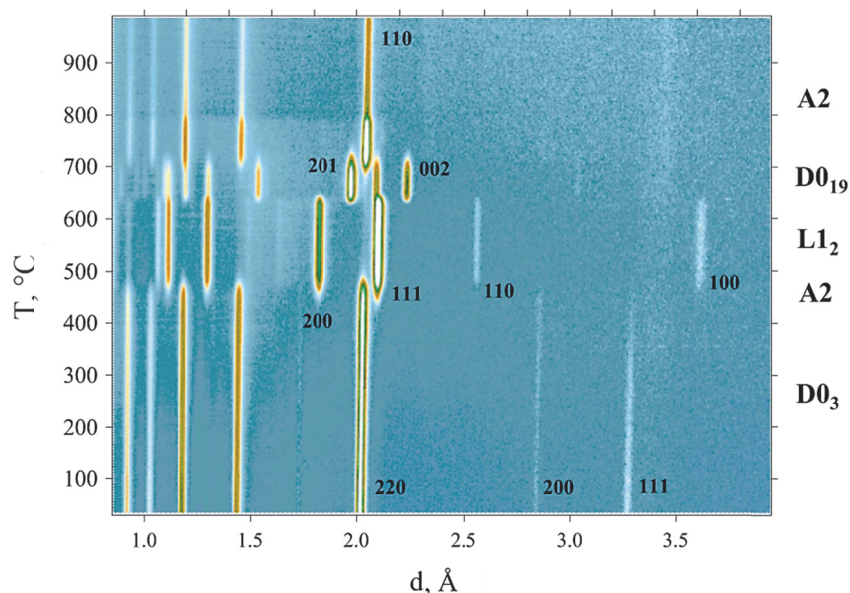
если необходимо пронаблюдать релаксацию после достижения заданной температуры.

Многие переходные процессы характеризуются экспоненциальным типом изменения параметров во времени. Например, по закону  $S(t) = S_0 \cdot (1 - \exp(-t/\tau))$  может увеличиваться содержание новой фазы в ходе химической реакции. В этой формуле  $\tau$  – характерное время процесса, т.е. за время, равное  $\tau$ , величина  $S(t)$  возрастает до  $0.63S_0$ . В дифракционном эксперименте масштаб характерных времен, доступных для изучения, характеризуется временем измерения одного спектра,  $t_s$ , с достаточным для целей эксперимента уровнем статистики. Если выполняется соотношение  $t_s \gg \tau$ , то процесс можно проследить с достаточной степенью подробности. Очевидно, что величина  $t_s$  зависит от потока нейтронов в первичном пучке, рассеивающей способности образца и телесного угла детектора. Естественно, что дифрактометрия в реальном времени может рассматриваться как отдельный метод, если  $t_s$  не слишком велико. При светосиле дифрактометра  $J_0 \sim 10^5$  н/с величина  $t_s$  может составлять несколько минут, что вполне достаточно для изучения многих химических реакций. Такие скорости счета на нейтронных дифрактометрах, действующих на наиболее высокопоточных источниках нейтронов, были достигнуты уже в 1980-е годы, что позволило начать систематические исследования, получившие в литературе название *RT (Real-Time) – экспериментов*.

Среди импульсных источников наилучшие возможности для проведения RT-экспериментов в те годы существовали на реакторе ИБР-2, где была выполнена серия экспериментов на кристаллах с разрешением по времени на уровне нескольких минут [Балагуров, Миронова, 1991]. Произшедшее затем значительное увеличение светосилы нейтронных дифрактометров позволило сократить этот параметр до минуты, а в некоторых случаях вплоть до секунды. Нейтронные *RT* – эксперименты дают исключительно ценную информацию о переходных процессах с участием легких атомов (заряд-разряд литиевых аккумуляторов, накопление водорода в интерметаллидах), в металлических сплавах, включающих атомы с близкими номерами, в разнообразных биологических объектах (гидратация липидных мембран) и др. В качестве примера на рис. 13.5.4 показано как структурные фазовые превращения проявляются в дифракционных спектрах, измеренных при нагреве сплава Fe-Ga с постоянной скоростью до 950 °C [Balagurov et al., 2017]. По исчезновению одних и появлению других сверхструктурных пиков можно четко проследить реализующуюся последовательность структурных фазовых переходов:  $D0_3 \rightarrow A2 \rightarrow L1_2 \rightarrow D0_{19} \rightarrow A2$ . Здесь использованы обозначения структурных фаз, принятые в кристаллографии и материаловедении. Фазы  $D0_3$ ,  $L1_2$  и  $D0_{19}$  – упорядоченные, т.е. атомы Fe и Ga занимают определенные положения в элементарных ячейках. В результате возникают сравнительно слабые *сверхструктурные пики*, интенсивность которых  $I_S \sim (b_{Fe} - b_{Ga})^2$ ,  $b$  – когерентные



длины рассеяния. Для неупорядоченной фазы A2 сверхструктурные пики отсутствуют.



**Рис. 13.5.4.** Дифракционные спектры сплава  $\text{Fe}_{73}\text{Ga}_{27}$  при его непрерывном нагреве с постоянной скоростью  $2\text{ }^\circ\text{C}/\text{мин}$  от комнатной температуры до  $950\text{ }^\circ\text{C}$ . Ось температуры-времени – снизу вверх, ось межплоскостных расстояний – слева направо. Исходное состояние – упорядоченная фаза  $\text{D0}_3$ , для нее указаны сверхструктурные пики 111, 200 и основной пик 220. Затем на короткое время состояние становится неупорядоченным (фаза A2) и последовательно возникают фазы  $\text{L1}_2$  (основные пики – 111 и 200, сверхструктурные пики – 100, 110,),  $\text{D0}_{19}$  (пики 002 и 201) и A2 (пик 110). Спектры измерялись каждую минуту, время нагрева составило около 450 минут, т.е. диаграмма содержит около 450 отдельных дифракционных спектров.

### 13.5.5. Анализ микроструктуры кристаллов

Под микроструктурой кристаллов в общем случае понимается любое отклонение в расположении атомов от идеального дальнего порядка. В случае монокристаллов в это понятие входят величина мозаичности, характерный размер областей когерентного рассеяния (ОКР), наличие двойников, дефекты различного типа и т.д. Для поликристаллов еще добавляются кристаллографическая текстура и внутренние напряжения, приводящие к смещению и уширению дифракционных пиков. Для упорядоченных сплавов в понятие микроструктуры включается еще и организация областей с упорядоченным расположением компонент. Микроструктура материала часто является предметом специального исследования, особенно в так называемых “функциональных материалах”, конкретные физические или материаловедческие свойства которых важны для их технологического использования, а особенности микроструктуры напрямую на них влияют.

В случае «идеального» поликристалла с  $\delta$ -образным сечением рассеяния профиль дифракционного пика определяется функцией разрешения дифрактометра. Для выявления влияния эффектов микроструктуры, модифицирующих профили пиков, разработано несколько методов анализа. В первом приближении их можно разделить на два типа – анализ только ширин или анализ полных профилей пиков. Оба эти подхода можно реализовать в двух вариантах:

- из дифракционного спектра выделяются отдельные пики, далее проводится их независимый анализ на уровне ширин или профилей;
- проводится анализ профиля всего дифракционного спектра, измеренного в достаточно широком интервале межплоскостных расстояний.

Под шириной дифракционного пика понимают несколько разных характеристик. Чаще всего ведется анализ величины, называемой «полная ширина на половине высоты» и обозначаемой  $W_{1/2}$  или FWHM (Full Width at Half Maximum). В другом варианте анализируется интегральная ширина,  $W_S$ , которая определяется как отношение площади пика к его амплитуде,  $W_S = S/A$  и, в принципе, имеет более ясный физический смысл [Mittemeijer, Welzel, 2008]. Если профиль пика симметричен, то  $W_{1/2}$  и  $W_S$  связаны друг с другом через постоянные коэффициенты и использование той или иной из них определяется какими-то дополнительными соображениями, например, надежностью отделения фоновой подложки. Далее в качестве меры ширины пика в основном будет использоваться величина  $W_{1/2}$ , и будет предполагаться, что она определена при описании профиля пика с помощью каких-то модельных функций.

Помимо функции разрешения, в большинстве случаев на ширину дифракционного пика влияют только два фактора – конечный размер областей когерентного рассеяния (ОКР) и дисперсия параметров элементарной ячейки. Первый из них получил название *эффект размера* (size effect), второй – *эффект деформаций* (strain effect). Происхождение эффекта размера разобрано в разделе 13.3.4. Дисперсия параметров ячейки связана с наличием в кристаллитах дефектов (точечных, дислокаций и др.), приводящих к возникновению неоднородных, случайных по величине и направлению искажений решетки в малых объемах, которые принято называть *микрдеформациями*. Их следует отличать от *макрдеформаций*, приводящих к однородному изменению параметров кристаллической решетки в сравнительно больших (включающих большое число отдельных кристаллитов) объемах материала (подробнее о них говорится в следующем параграфе). Еще одной причиной, приводящей к уширению дифракционных пиков, может быть вариация химического состава кристаллического соединения от кристаллита к кристаллиту. Как следствие возникает вариация параметров элементарной ячейки, сопровождающаяся уширением пиков.

Одной из проблем анализа микроструктуры является разделение вкладов в уширение дифракционных пиков от эффектов размера и деформаций. В основном

она связана с тем, что для описания этих эффектов необходимо ввести какую-то функцию распределения. Если оба распределения предполагается лоренцевыми, то ширина результирующего распределения является суммой ширин каждого из них. В случае же гауссовых распределений складывать следует дисперсии, т.е. величины пропорциональные квадратам ширин. Возможна и ситуация, когда распределение частиц по размерам предполагается лоренцевыми, а распределение деформаций по величине – гауссовым. В этом случае следует использовать функцию Войта – свертку функций Лоренца и Гаусса. Иногда важно иметь в виду, что определяемый в дифракционном эксперименте размер ОКР может заметно отличаться от оптического размера, если периферическая область кристаллитов аморфизована. Эти соображения говорят о том, что получаемые из анализа интегральных параметров дифракционных пиков величины на самом деле являются лишь оценками для характерного размера кристаллитов или микродеформаций в них. Тем не менее, во многих случаях анализ эффектов уширения дифракционных пиков полезен, особенно если он ведется для вещества, находящегося в изменяющихся условиях.

Современное изложение методов анализа профилей дифракционных пиков содержится в сборнике статей [Mittemeijer, Welzel, 2013]. При анализе ширин отдельных дифракционных пиков наиболее простым и универсальным является метод Вильямсона-Холла, основанный на разной функциональной зависимости эффектов размера и деформаций от вектора  $\vec{g}$ . Если соответствующие этим эффектам функции распределений являются гауссианами, то в шкале межплоскостных расстояний дополнительный вклад в ширины пиков есть:

$$(\Delta d_c)^2 = (d^2/L_r)^2 + (2\epsilon d)^2, \quad (13.5.5)$$

где  $L_r$  – характерный размер ОКР,  $\epsilon$  – микродеформации, т.е. статические флуктуации параметра элементарной ячейки.

Рассмотрим, в качестве примера, как метод Вильямсона-Холла применяется для определения величин  $L_r$  и  $\epsilon$  из нейтронограмм, измеренных на ТОФ-дифрактометре. Будем для простоты предполагать, что все функции распределения, включая функцию разрешения, являются гауссианами.

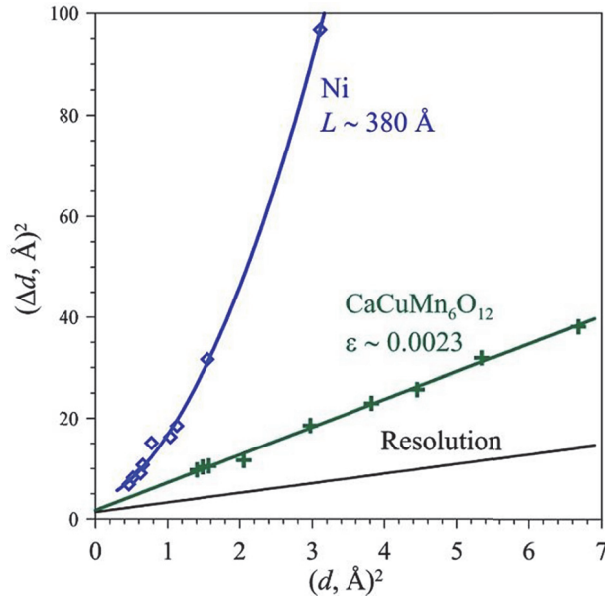
Из формулы (13.4.5) для функции разрешения ТОФ-дифрактометра можно получить для «инструментальной» ширины пиков в  $d$ -шкале (пренебрегая величиной  $\Delta L/L$ ):

$$(\Delta d_R)^2 = C_1 + C_2 \cdot d^2, \quad (13.5.6)$$

где при фиксированном угле рассеяния  $C_1 = (\Delta t_0/505.557 \cdot L \sin \theta_B)^2$  и  $C_2 = (\Delta \theta_B/\text{tg} \theta_B)^2$  есть некоторые константы дифрактометра. Складывая  $(\Delta d_c)^2$  и  $(\Delta d_R)^2$ , получаем, что полная ширина дифракционных пиков, учитывающая вклад функции разрешения, эффекты размера и микродеформаций, есть:

$$(\Delta d)^2 = C_1 + (C_2 + C_3) \cdot d^2 + C_4 \cdot d^4, \quad (13.5.7)$$

где  $C_3 = (2\varepsilon)^2$ ,  $C_4 = (1/L_r)^2$ . Отсюда следует, что в  $d$ -шкале квадрат ширины пиков есть линейная функция при отсутствии эффекта размера и парабола в общем случае, если в качестве переменной используется  $d^2$ . Эти варианты иллюстрируются на рис. 13.5.5. Определяя величины  $C_1$  и  $C_2$  из измерений со стандартным поликристаллом, типа  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , и описывая по методу МНК зависимость  $(\Delta d)^2$  от  $d^2$  полиномом 2-й степени можно определить  $\varepsilon$  и  $L$ .



**Рис. 13.5.5.** Зависимости  $(\Delta d)^2$  от  $d^2$  для ширины дифракционных пиков соединения  $\text{CaCuMn}_6\text{O}_{12}$  и наноразмерного порошка ( $L_r \sim 380 \text{ Å}$ ) никеля, измеренные на дифрактометре HRFD. Для  $\text{CaCuMn}_6\text{O}_{12}$  показана зависимость с уровнем микродеформаций  $\varepsilon \sim 0.0023$ . Эффект размера для этого состава отсутствует. Для Ni зависимость параболическая (есть эффект размера с  $L_r \approx 380 \text{ Å}$ ). Линия внизу – вклад в ширину дифракционных пиков, связанный с разрешающей способностью HRFD. Величины  $\Delta d$  умножены на  $10^3$ .

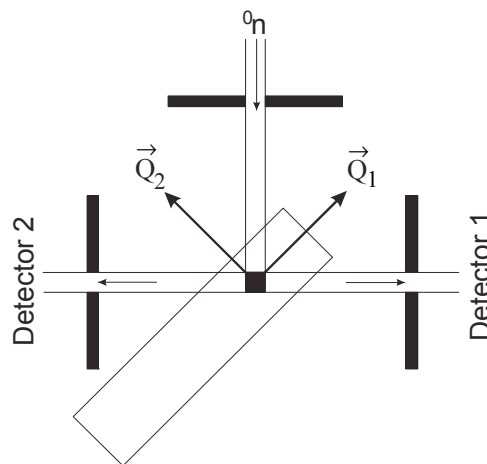
### 13.5.6. Анализ механических напряжений

Анализ *внутренних напряжений* в материалах и узлах устройств принято относить к *прикладным* задачам, т.е. задачам, не имеющим какой-либо научной новизны. Действительно, сведения о внутренних напряжениях в объемных материалах, изделиях или деталях машин, обычно интересуют инженеров в связи с прочностью материала и его работоспособностью. Определение механических напряжений в материалах, используемых в промышленности, позволяет выработать технологические рекомендации по проведению различных операций (сварки, проката) или оценить влияние циклических нагрузок (механических, термических) на прочность материала. С этой точки зрения, интерес

представляют так называемые напряжения 1 рода, которые вызывают однородное по величине и направлению сжатие или растяжение материала в объемах, объединяющих, по крайней мере, несколько кристаллических зерен. Их принято называть *макронапряжениями*, они приводят к сдвигу дифракционных пиков по отношению к положению пиков от недеформированного материала, что и используется для их определения.

При анализе механических напряжений основным достоинством дифракции тепловых нейтронов является их большая проникающая способность, позволяющей сканировать объем образца на значительной глубине (до 6 см в сталях и 10 см в Al), что особенно важно для исследования напряжений в технических конструкциях. Существенным ограничением этого метода является его сравнительно малая светосила, хотя современные специализированные нейтронные дифрактометры позволяют определять напряжения с пространственным разрешением 0.5 мм за разумное время измерения.

Суть дифракционного метода исключительно проста и в стандартной постановке эксперимента состоит в том, что с помощью диафрагм в образце выделяется малый объем (рис. 13.5.6) (*пробный объем* или *gauge volume*) и измеряется дифракционный спектр, состоящий из одного или нескольких пиков. Затем образец сдвигается в новую позицию или изменяется его ориентация, и процесс измерения повторяется. Основными определяемыми величинами являются смещения положения дифракционных пиков от положений, определяемых параметрами элементарной ячейки недеформированного материала.



**Рис. 13.5.6.** Постановка эксперимента по определению макронапряжений в объемном изделии на TOF-дифрактометре. Диафрагмы формируют падающий и рассеянные пучки нейтронов и, соответственно, рассеивающий объем внутри изделия. Детекторы расположены при углах рассеяния  $\pm 90^\circ$ , что позволяет одновременно определять деформации в двух взаимно перпендикулярных направлениях  $Q_1$  (тангенциальном) и  $Q_2$  (нормальном). Для измерения деформаций в третьем направлении (перпендикулярном плоскости рисунка) образец следует повернуть на  $90^\circ$ .

Смещения пиков дают прямую информацию об изменении межплоскостных расстояний в выделенном объеме, которая может быть легко преобразована в данные о макронапряжениях:

$$(d_{exp} - d_0)/d_0 = \Delta a/a_0 \approx \sigma/E, \quad (13.5.8)$$

где  $d_{exp}$  – измеренное значение межплоскостного расстояния,  $d_0$  – это же межплоскостное расстояние в образце без внутренних напряжений,  $\Delta a/a_0$  – относительное изменение параметра элементарной ячейки материала (деформация, strain),  $E$  – модуль Юнга вещества,  $\sigma$  – напряжение (stress). Формула (13.5.8) может служить только для предварительных оценок, правильные и полные соотношения между измеряемыми в эксперименте компонентами тензора деформаций  $\varepsilon_{ij}$  и тензора напряжений  $\sigma_{ij}$  приведены, например, в книге [Hutchings et al., 2005].

Исходя из известных значений модуля Юнга, легко оценить, с какой точностью необходимо измерять межплоскостные расстояния, чтобы ошибка в определении  $\sigma$  не превышала, например, 100 МПа, что, как правило, вполне достаточно для инженерных расчетов. Для сталей  $E \approx 200$  ГПа и, следовательно,  $\Delta a/a_0$  нужно измерять с точностью лучше, чем  $5 \cdot 10^{-4}$ , для алюминия  $E \approx 70$  ГПа и достаточно иметь точность порядка  $10^{-3}$ , т.е. дифрактометр для измерения внутренних напряжений должен обладать высокой разрешающей способностью. Существующая практика показала, что необходимой точности можно достичь и на  $\lambda_0$ -дифрактометрах, действующих на стационарных реакторах, и на TOF-дифрактометрах, действующих на импульсных источниках нейтронов. Основным достоинством первого варианта является большая светосила и, соответственно, возможность сканирования образца с хорошим пространственным разрешением, и сравнительно малое время измерения. Но при этом, как правило, измеряется только один дифракционный пик, расположенный при  $2\theta \approx 90^\circ$ . Во втором случае, легко реализуется фиксированная и наиболее оптимальная 90-градусная геометрия эксперимента и, в отличие от первого варианта, одновременно измеряются несколько дифракционных пиков, что позволяет провести анализ анизотропии напряжений.

Систематическое применение дифракции нейтронов для определения внутренних напряжений в объемных материалах и изделиях началось сравнительно недавно, около 20 лет назад. Однако достоинства этого метода оказались настолько существенны, что за прошедшие годы практически во всех современных нейтронных центрах созданы специализированные дифрактометры для изучения внутренних напряжений. В России специализированные нейтронные дифрактометры для изучения внутренних напряжений существуют на импульсном источнике нейтронов ИБР-2 и стационарном реакторе ИР-8 в НИЦ КИ. На ИБР-2 они ведутся с использованием фурье-дифрактометрии, что позволило получить необходимый уровень разрешения при пролетном расстоянии между прерывателем и образцом всего 5.5 м [Bokuchava, 2018].

Стресс-дифрактометр в НИЦ КИ создан по оригинальной схеме с использованием двухкристального монохроматора [Em et al., 2018]. Применение двух кристаллов монохроматоров вместо одного позволило добиться очень хорошей разрешающей способности и компактности установки при фактически максимально возможной его светосиле. Основная идея применения двухкристального монохроматора – формирование пучка нейтронов, падающего на образец, параллельного или почти параллельного первичному пучку нейтронов. Хорошая светосила дифрактометра достигается сравнительно небольшим удалением монохроматора от источника нейтронов, а высокое разрешение обеспечивается фокусировкой пучка на образце изогнутым кристаллом кремния. В результате оказалось, что эта установка, несмотря на небольшую мощность реактора (ИР-8 имеет мощность около 6 МВт) сопоставима по своим возможностям со стресс-дифрактометрами, действующими на существенно более мощных реакторах.

### 13.5.7. Анализ кристаллографической текстуры

Принято говорить, что поликристаллическое вещество обладает *кристаллографической текстурой*, если какие-либо ориентации его монокристаллических зерен являются преимущественными. Текстура может возникать в результате естественных процессов, например, при формировании горных пород, или создаваться целенаправленно для улучшения эксплуатационных характеристик материалов вследствие образования анизотропии его физических свойств. Количественное описание текстуры предполагает знание распределения кристаллитов по ориентациям – *функции распределения ориентаций* (ФРО). Основными задачами текстурного анализа являются экспериментальное определение ФРО, его интерпретация и установление взаимосвязи между типом и степенью текстурированности материала с его физическими свойствами. Современное изложение дифракционных методов и математического аппарата текстурного анализа, а также примеры конкретных нейтронных экспериментов по определению текстуры можно найти в учебном пособии [Никитин, 2010] и обзорах [Wenk, 2013, Иванкина, Маттис, 2015].

Помимо собственно текстурного анализа, определение текстуры может быть необходимо, если эксперимент по определению структуры материала проводится на текстурированном образце. В этом случае задачей является корректное введение поправок на текстуру в измеренные интенсивности дифракционных пиков. И, например, программные комплексы, использующие метод Ритвельда, в обязательном порядке содержат те или иные методы учета текстуры.

Дифракционный текстурный эксперимент состоит в определении зависимости относительных интенсивностей некоторого числа брэгговских пиков от ориентации образца относительно первичного и рассеянного пучков. Для кристаллов низкой симметрии изменение ориентаций образца обычно

выполняется в полусфере реального пространства. Высокая симметрия кристаллической решетки позволяет этот объем сократить до 1/4 или даже до 1/8 полной сферы. Если эксперимент проводится на  $\lambda_0$ -дифрактометре, то текстура проявляется в неравномерном распределении интенсивности по кольцу Дебая-Шеррера (рис. 13.5.7). Вместо равномерной засветки колец Дебая-Шеррера, интенсивность рассеянного излучения концентрируется в виде отдельных пятен или дуг. Изменение ориентации образца с помощью гониометра меняет их интенсивность и расположение.

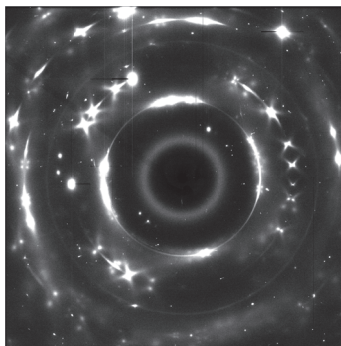


Рис. 13.5.7. Проявление текстуры поликристаллического образца в дифракционном эксперименте.

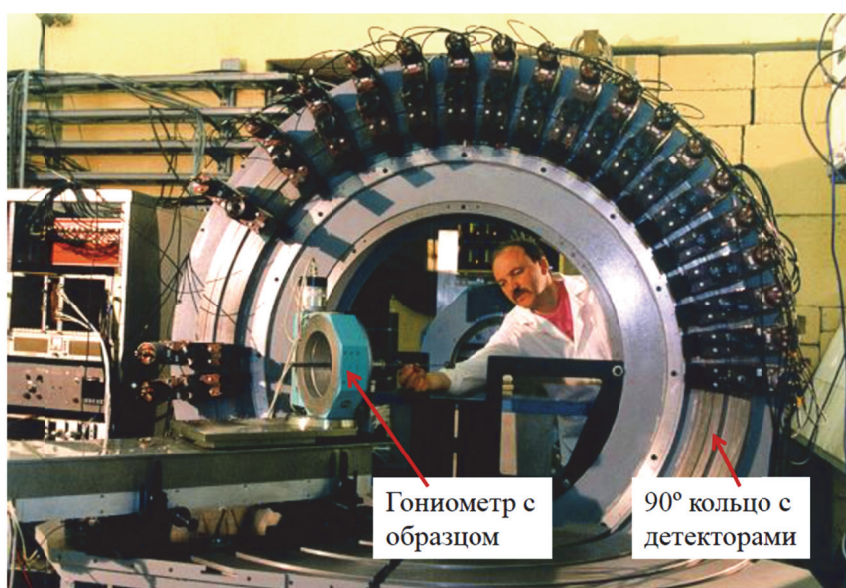
Обычным методом анализа текстуры материала является построение на основе измеренных интенсивностей *полюсных фигур*, представляющих собой стереографические проекции нормалей к отражающим плоскостям, т.е. узлов ( $hkl$ ) в обратном пространстве. Многочисленные примеры экспериментальных полюсных фигур содержатся в цитированной выше литературе. Полюсные фигуры дают качественное представление о кристаллографической текстуре. Если измерено достаточно большое количество полюсных фигур, то с помощью разработанных математических методов можно вычислить ФРО, определяющую вероятность тех или иных ориентаций кристаллографических плоскостей в объеме образца.

Другой возможностью получения информации о ФРО является использование метода Ритвельда. Поскольку атомная структура присутствующих в образце кристаллических фаз, как правило, хорошо известна, то анализ профилей дифракционных спектров, измеренных при различных ориентациях образца, позволяет определить влияние текстуры на интенсивность дифракционных пиков и, в конечном итоге, определить ФРО. В частности, это позволяет сделать программный пакет MAUD (Material Analysis Using Diffraction) [Lutterotti et al., 1997].

Для анализа кристаллографических текстур используются все виды коротковолновых излучений (рентгеновское, синхротронное и нейтронное). Эффективность дифракции нейтронов определяется, в основном, большой



глубиной проникновения и большим поперечным сечением нейтронного пучка (до нескольких см). Это обеспечивает объемный характер получаемой информации и намного лучшее, чем в случае других излучений, усреднение по ориентациям кристаллических зерен. Текстуальный эксперимент может быть проведен как на  $\lambda_0$ -, так и на TOF-дифрактометре. Для ускорения набора информации используются позиционно-чувствительные или многодетекторные системы регистрации. Если используется многодетекторная система на TOF-дифрактометре, то при фиксированной ориентации образца одновременно измеряются некоторое количество точек на нескольких полюсных фигурах. Тем не менее, поскольку полное число спектров, измеряемых для разных ориентаций образца, достигает нескольких сотен, то продолжительность текстуального эксперимента на одном образце составляет порядка суток.



**Рис. 13.5.8.** Конфигурация центральной части текстуального дифрактометра СКАТ на реакторе ИБР-2. Детекторы с соллеровскими коллиматорами перед ними располагаются на массивном кольце при угле рассеяния  $\theta = 90^\circ$ . Образец крепится на гониометре, позволяющем изменять его ориентацию относительно пучка нейтронов (выходит из-за кольца) и детекторов.

Примером современного текстуального TOF-дифрактометра является установка СКАТ (Спектрометр Количественного Анализа Текстуры), действующая на импульсном реакторе ИБР-2 [Ullemeyer et al., 1998]. На рис. 13.5.8 показана исходная конфигурация детекторной системы дифрактометра с одним кольцом при  $\theta = 90^\circ$ . Позднее, в ходе модернизации, были добавлены детекторные кольца при углах рассеяния  $65^\circ$  и  $135^\circ$  с 19 детекторами на каждом кольце, т.е. при фиксированной ориентации образца одновременно измеряются 57

дифракционных спектров. СКАТ создавался с ориентацией на исследования текстур горных пород, спецификой которых является содержание в образцах не одной, а нескольких минеральных фаз, некоторые из которых могут, к тому же, иметь низкую симметрию. Это приводит к появлению в дифракционном спектре большого числа пиков, многие из которых перекрываются. Соответственно, для уверенного определения их интегральных интенсивностей необходима достаточно высокая разрешающая способность дифрактометра по межплоскостному расстоянию и поэтому центральная часть дифрактометра располагается на расстоянии около 100 м от активной зоны реактора. Детекторы на малом угле рассеяния ( $65^\circ$ ) позволяют измерять дифракционные пики вплоть до  $d = 6.5 \text{ \AA}$  с  $\Delta d/d \approx 6 \cdot 10^{-3}$ . На большом угле рассеяния ( $135^\circ$ ) дифракционные пики измеряются до  $d \approx 4 \text{ \AA}$ , но с заметно лучшим разрешением,  $\Delta d/d \approx 3 \cdot 10^{-3}$ . Эти характеристики вывели СКАТ в число лучших текстурных дифрактометров в мире.

Магнитное взаимодействие нейтронов с веществом может быть использовано для анализа *магнитных текстур*, под которыми, обычно, подразумевается преимущественная ориентация осей легкого намагничивания в ферро- или ферримагнитных материалах. Такие работы пока носят, в основном, демонстрационный характер, как, например, [Birsan et al., 1996], в которой для выделения магнитной части текстуры использовалось сравнение дифракционных спектров, измеренных при различных внешних магнитных полях.

### Рекомендуемая литература к главе 13

Аксенов В.Л., Балагуров А.М. (2016) *Дифракция нейтронов на импульсных источниках*, УФН, **186**, 293-320.

Балагуров А.М. (2017) *Дифракция нейтронов для решения структурных и материаловедческих задач*, Учебное пособие, Физфак МГУ им. М.В.Ломоносова.

Нозик Ю.З., Озеров Р.П., Хениг К. (1979) *Структурная нейтронография*, М.: Атомиздат.

Пирогов А.Н., Сёмкин М.А. (2020) *Структурная и магнитная нейтронография*, Учебное пособие, Екатеринбург, Уральский университет.

Bacon G.E. (Ed.) (1986) *Fifty years of neutron diffraction*, Adam Hilger, Bristol.

## ГЛАВА 14. МАЛОУГЛОВОЕ РАССЕЙНИЕ

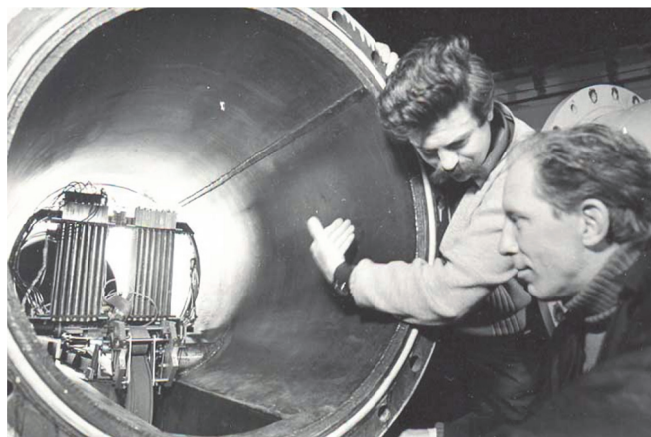
### § 14.1. Общие замечания

Как экспериментальный метод изучения структуры вещества на атомном уровне малоугловое рассеяние рентгеновских лучей (МУРР) начало использоваться заметно позже рентгеновской дифракции – первые работы относятся к началу 1930-х годов. Систематическое изложение основ метода содержится в монографиях одного из его основателей А. Гинье [Guinier, Fournet, 1955; Гинье, 1961].

Малоугловое рассеяние нейтронов (МУРН) как метод оформилось в начале 1950-х годов, после того как были построены стационарные ядерные реакторы. В статье, где впервые упоминается МУРН [Hughes et al., 1949], и в монографии [Юз, 1955] под малоугловым рассеянием понимался эффект уширения первичного пучка вследствие преломления и зеркального (т.к. рассеяние упругое) отражения нейтронов на границах магнитных доменов. Несколько позже в том же году была разработана теория МУРН [Halpern, Getjuoy, 1949], близкая к современной его интерпретации, и выполнены первые эксперименты [Weiss, 1951]. В настоящее время под малоугловым рассеянием нейтронов понимаются дифракционные эффекты, возникающие при рассеянии на объектах, имеющих другую рассеивающую способность, чем у среды, в которой они находятся (кристаллическая матрица, растворитель). Соответственно, с точки зрения рассеивающей способности эти объекты представляют собой неоднородности среды. Размеры неоднородностей предполагаются намного большими, чем длина волны нейтронов, вследствие чего эффекты рассеяния сосредоточены в области сравнительно малых углов (в пределах нескольких угловых градусов) (см. также введение к гл. 3).

В Советском Союзе метод МУРН начал развиваться в конце 1950-х годов на реакторах ИРТ в Москве (НИЦ КИ) и ВВР-М в Гатчине (ПИЯФ). В НИЦ КИ акцент был сделан на «ультрамалоугловое» рассеяния на двухкристальном спектрометре (В.А.Соменков, С.Ш.Шильштейн), позволявшем анализировать неоднородности с размерами вплоть до 10 мкм. В ПИЯФ с самого начала работы реактора развивалась техника поляризованных нейтронов, которая по предложению Г.М.Драбкина была использована и для экспериментов по МУРН. В частности, был создан малоугловой спектрометр «МЕМБРАНА», на котором велись исследования надмолекулярных и биологических объектов. С середины 1970-х годов метод МУРН начал развиваться на импульсных источниках нейтронов. Один из первых ТОФ-спектрометров МУРН был создан на реакторе ИБР-30 в ОИЯИ (Дубна) [Воронов и др., 1976]. Он был сконструирован в *целевой* геометрии (рис. 14.1.1), что определялось детектором из  $^3\text{He}$ -счетчиков, но после

создания кольцевого детектора нейтронов был перестроен на использование стандартной *аксиальной* геометрии.



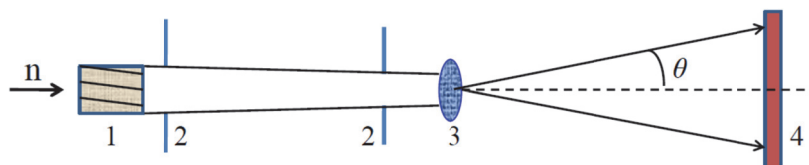
**Рис. 14.1.1.** Детекторная система первого спектрометра МУРН на импульсном реакторе ИБР-30 (Дубна), помещенная в вакуумную трубу. Реализована «щелевая геометрия» с вертикально поставленными несколькими цилиндрическими счетчиками  $^3\text{He}$ . Справа – создатели спектрометра Ю.М.Останевич и Л.Чер.

В настоящее время МУРН является всесторонне развитым методом определения геометрических характеристик практически любого типа надатомных неоднородностей среды, в исключительно широком диапазоне размеров, от нескольких десятков  $\text{\AA}$ , до микрометров. Спектрометры МУРН в обязательном порядке присутствуют на любых типах современных источников нейтронов. Научная тематика, охватываемая этим методом, включает изучение коллоидальных, полимерных, биологических, пористых систем, процессов самоорганизации, агрегации, кристаллизации, фазовой сегрегации и т.д. Эксперименты ведутся как в стационарных, так и при непрерывно меняющихся внешних воздействиях – температуры, влажности, давления, электрического или магнитного полей и т.д.

Помимо уже упомянутых монографий А.Гинье, еще одно классическое изложение методики как рентгеновского, так и нейтронного малоуглового рассеяния содержится в книге [Свергун, Фейгин, 1986]. С появлением высокопоточных стационарных ядерных реакторов одной из основных задач для МУРН стало изучение структуры биологических объектов. Представление о том, как эта задача выглядела в начале 1980-х годов, содержится в обзоре [Останевич, Сердюк, 1982]. Современное изложение проблем, связанных с применением МУРР и МУРН в молекулярной биофизике, дано в специальном разделе «Рентгеновская и нейтронная дифракция» в книге [Сердюк и др., 2010]. Теоретическое введение в тему малоуглового рассеяния дано в Главе 3, § 3.4.

### § 14.2. Постановка задачи и предмет исследования

Стандартная схема эксперимента по методу МУРН на стационарном источнике нейтронов приведена на рис. 14.2.1. С помощью селектора скоростей выбирается средняя длина волны и степень монохроматизации пучка. Диафрагмы определяют размер и расходимость пучка на образце. Рассеянные нейтроны регистрируются ПЧД. Расстояния источник – образец – детектор и размер диафрагм могут изменяться в некоторых интервалах, их конкретными величинами определяется разрешающая способность спектрометра и диапазон переданных импульсов.



**Рис. 14.2.1.** Схема постановки эксперимента по рассеянию на малые углы. Обозначены: 1 – монохроматор (селектор скоростей), 2 – коллимирующие диафрагмы, 3 – исследуемый образец, 4 – позиционно-чувствительный детектор,  $\theta$  – угол рассеяния.

Если диафрагмы вытянуты вдоль одной из координат, то схема коллимации называется *целевой*, если они круглые, то – *аксиальной* или *точечной*. При аксиально-симметричном рассеянии на образце измеряемой величиной является зависимость регистрируемой детектором интенсивности от угла рассеяния  $\theta$ . В противном случае появляется зависимость и от аксиального угла. Если эксперимент ставится на импульсном источнике нейтронов, то длина волны также включается в переменные эксперимента, т.е. измеряется  $I(\theta, \lambda)$ , которая затем переводится в зависимость интенсивности от вектора рассеяния.

В разделе 3.4.2 была введена формула (3.4.4), связывающая плотность длины рассеяния (ПДР),  $\rho(\vec{r})$ , с амплитудой упруго и когерентно рассеянной волны,  $f(\vec{q})$ :

$$f(\vec{q}) = \int \rho(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r}. \quad (14.2.1)$$

Здесь интеграл берется по всему (когерентному) объему исследуемой системы, рассеивающая плотность  $\rho(\vec{r})$  может относиться как к рассеянию на ядрах атомов, так и на их магнитных моментах.

Для иллюстрации некоторых особенностей метода малоуглового рассеяния рассмотрим простейший объект, а именно, сильно разбавленный раствор одинаковых шаров с радиусом  $R$ . Очевидно, что в этом случае рассеяние сферически симметрично и можно от векторов перейти к их модулям.

Соответственно, формулу (14.2.1) можно упростить, перейдя к сферическим координатам (подробно это выполнено в 3.4.2.):

$$f(q) = (4\pi/V_0) \cdot \int \rho(r) \cdot r^2 \cdot \sin(qr)/(qr) dr, \quad (14.2.2)$$

интегрирование проводится по объему шара. Если предположить еще, что частицы однородные, т.е.  $\rho(r) = \text{const} = \rho_p$ , то дальнейшее упрощение приводит к

$$f(q) = (4\pi/V_0) \cdot \rho_p \cdot \int r^2 \cdot \sin(qr)/(qr) dr = (4\pi/3V_0) \cdot \rho_p \cdot R^3 F_B(q), \quad (14.2.3)$$

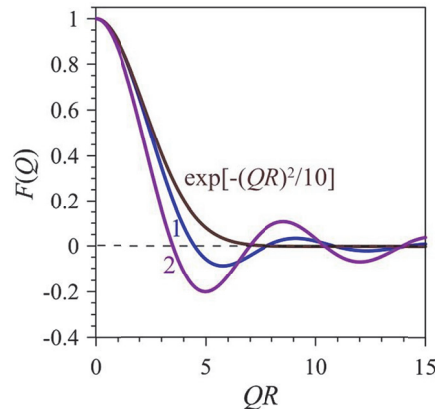
где  $F_B(q)$  – функция (формфактор), зависящая от модуля вектора рассеяния и радиуса шара. Интеграл в (14.2.3) легко вычисляется:

$$F_B(q) = 3[\sin(qR) - (qR)\cos(qR)]/(qR)^3. \quad (14.2.4)$$

При малых  $x$ ,  $\sin x = x - x^3/6 + x^5/120 - \dots$ ,  $\cos x = 1 - x^2/2 + x^4/24 - \dots$  и из (14.2.4) получаем  $F(q) \approx 1 - (qR)^2/10$  или, с тем же уровнем точности

$$F(q) \approx \exp[-(qR)^2/10]. \quad (14.2.5)$$

На рис. 14.2.2 показаны формфактор  $F(q)$  для шара и его аппроксимация в виде гауссиана (14.2.5). Видно, что обе функции до  $qR \approx 3$  достаточно хорошо соответствуют друг другу. Кроме того, на рис. 14.2.2 показан формфактор для тонкого шарового слоя с соотношением внутреннего и внешнего радиусов как 4/5. Его основное отличие от поведения формфактора для шара состоит в некотором смещении положений минимумов и максимумов.



**Рис. 14.2.2.** Формфактор однородного шара радиуса  $R$  (кривая 1) и его аппроксимация гауссианом. Кривая 2 – формфактор для шарового слоя с соотношением внутреннего и внешнего радиусов как 4/5.

Интенсивность рассеяния на шаре становится близкой к нулю при  $qR \approx 4$ . Подставляя  $q = 4\pi \cdot \sin(\theta/2)/\lambda$ , получаем  $\sin(\theta/2) \approx \lambda/(\pi R)$ . Отсюда следует, что если  $R \geq 50 \text{ \AA}$  и  $\lambda \approx 3 \text{ \AA}$ , то  $\sin(\theta/2) \leq 0.02$ , т.е.  $\theta \leq 1.2^\circ$ . Итак, если радиус шара составляет несколько десятков  $\text{Å}$ , а длина волны излучения находится в диапазоне

нескольких  $\text{\AA}$ , то рассеянная интенсивность в основном сосредоточена в области малых углов. Это обстоятельство и определяет термин «*малоугловое рассеяние*». Можно и в общем случае показать, что интенсивность рассеяния на разбавленном растворе частиц является быстро спадающей функцией,  $I(q) \sim 1/q^\alpha$  (конкретное значение  $\alpha$  зависит от структурных особенностей частиц, см. таблицу 3.4.1), и, в основном, она сосредоточена в области значений  $q$ , удовлетворяющих условию  $q \sim 2\pi/D$ , где  $D$  – характерный размер частиц.

В приведенных формулах никак не учитывалось то, что частицы, на которых происходит рассеяние, находятся в некоторой среде, в данном случае, в растворителе. В § 3.4 показано, что для учета влияния однородной и изотропной среды, в которую погружены изучаемые объекты, вместо  $\rho(r)$  следует использовать  $[\rho(r) - \rho_0]$ , где  $\rho_0$  – ПДР растворителя, т.е. важна не абсолютная величина  $\rho(r)$ , а ее отличие от  $\rho_0$ .

Рассмотренный пример с однородными и одинаковыми шарами позволяет сформулировать некоторые основные особенности метода. Рассеяние на разбавленном растворе шаров, размеры которых заметно превышают длину волны излучения, сосредоточено в области малых углов. Из поведения кривой в области малых  $q$  можно определить радиус шара, а из положений максимумов и минимумов на кривой рассеяния можно, в принципе, сделать заключения о геометрической форме частиц. Изменяя рассеивающую плотность среды (этот прием получил название «*вариация контраста*») можно добиться исчезновения малоуглового рассеяния, а в случае неоднородной по объему частицы, состоящей из областей с разной средней рассеивающей плотностью, можно поочередно выделять рассеяние на ее отдельных областях.

На нейтронных источниках эксперименты с использованием метода МУРН проводятся, в основном, в интервале длин волн от 2 до 20  $\text{\AA}$ . Полагая, что доступным диапазоном углов рассеяния является  $\theta \approx (0.1 - 5)^\circ$ , получаем для интервала векторов рассеяния  $q \approx (0.001 - 0.5) \text{\AA}^{-1}$ . Из оценки для характерного размера частиц  $D \sim 2\pi/q$  получаем, что практическая работа сосредоточена в диапазоне размеров частиц  $D \approx (10 - 6000) \text{\AA}$ . Естественно, что он может быть расширен в сторону больших размеров, увеличением длины волны или уменьшением угла рассеяния.

В методе МУРН регистрируемую детектором интенсивность рассеянных нейтронов на образце, содержащем неоднородности в виде отдельных частиц, можно записать следующим образом:

$$I = \Phi_0 \cdot d\sigma/d\Omega \cdot (NV_s) \cdot \Omega_{\text{det}}, \quad (14.2.6)$$

где  $\Phi_0$  [ $\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$ ] – поток нейтронов на образце,  $d\sigma/d\Omega$  [ $\text{см}^2/\text{ср}$ ] – дифференциальное сечение рассеяния частицей,  $N$  [ $\text{см}^{-3}$ ] – число частиц в 1  $\text{см}^3$ ,  $V_s$  [ $\text{см}^3$ ] – объем образца,  $\Omega_{\text{det}}$  [ср] – телесный угол детектора. Здесь в квадратных скобках указаны размерности величин, учет которых дает размерность

интенсивности как  $[c^{-1}]$ , т.е. число нейтронов, регистрируемых детектором в 1 сек. Вместо  $d\sigma/d\Omega$  в МУРН принято использовать «макроскопическое сечение рассеяния»  $d\Sigma/d\Omega = N \cdot d\sigma/d\Omega$   $[cm^{-1}]$ , имеющее смысл вероятности рассеяния на единице пути. Записывая еще объем образца в виде  $V_s = S \cdot d$ , где  $S$  – облучаемая нейтронами площадь образца,  $d$  – его толщина, получаем окончательную формулу:

$$I = I_0 \cdot d\Sigma/d\Omega \cdot d \cdot \Omega_{det}, \quad (14.2.7)$$

где  $I_0$   $[c^{-1}]$  – интенсивность нейтронов на образце. Величину  $N$ , входящую в выражение для  $\Sigma = N\sigma$ , можно рассчитать по формуле  $N = \rho N_A / A$ , где  $\rho$  – плотность вещества  $[г/см^3]$ ,  $N_A = 6.022 \cdot 10^{23}$   $[моль^{-1}]$  – число Авогадро,  $A$  – атомная масса  $[г/моль]$ . Для корректного расчета регистрируемой интенсивности следует еще в (14.2.7) ввести учет поглощения нейтронов в образце,  $A(\lambda)$ , и эффективность детектора,  $\varepsilon(\lambda)$ , зависящие от длины волны нейтрона. Коэффициент поглощения рассчитывается или измеряется, а эффективность детектора, также как  $I_0$ , обычно определяются при измерении интенсивности от стандартного рассеивателя (ванадий или вода), для которого известно  $d\Sigma/d\Omega$ .

Рассмотренный случай однородных шарообразных молекул в растворе может быть обобщен на более сложные случаи, такие как полидисперсные системы, концентрированные системы, частицы сложной формы и неоднородные по объему и т.д. Некоторые из этих случаев кратко рассмотрены в следующих разделах.

### § 14.3. Некоторые особенности метода

Принципы теории малоуглового рассеяния нейтронов (МУРН), основные приближения (Гинье, Дебая, Порода) и особенности рассеяния на фрактальных и диффузных поверхностях рассмотрены в § 3.4. В этом параграфе рассмотрены особенности применения метода МУРН в некоторых конкретных случаях.

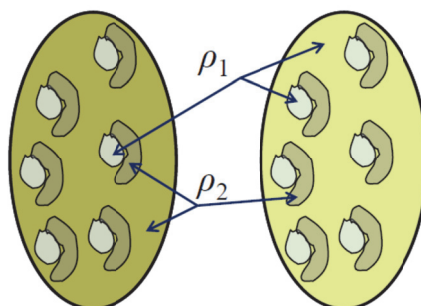
#### 14.3.1. Вариация контраста

Понятие *контраста*, который выше был определен как разность между ПДР частицы и ПДР матрицы, может быть легко обобщено на двух- и многокомпонентные частицы. Очевидно, что интенсивность рассеяния на конкретной компоненте частицы будет зависеть от разности между ее ПДР и ПДР матрицы. Отсюда следует исключительно важный вывод о том, что уровень интенсивности малоуглового рассеяния на компоненте частицы может быть радикально изменен (вплоть до его полного исчезновения) при вариации ПДР матрицы.

Принцип метода схематически иллюстрируется на рис. 14.3.1. В случае двухкомпонентной частицы в растворителе малоугловое рассеяние происходит только на компоненте частицы с ПДР  $\rho_1$ , если ПДР растворителя,  $\rho_2$ , такая же, как



у второй компоненты частицы (левая часть рисунка). Наоборот, если ПДР растворителя такая же, как у первой компоненты частицы,  $\rho_1$ , то рассеяние происходит только на компоненте частицы с  $\rho_2$  (правая часть рисунка).



**Рис. 14.3.1.** Иллюстрация метода вариации контраста для двухкомпонентной частицы в растворителе. Компоненты частицы имеют рассеивающие плотности  $\rho_1$  и  $\rho_2$ , рассеивающая плотность растворителя меняется с  $\rho_2$  (слева) на  $\rho_1$  (справа).

При рассеянии рентгеновских лучей вариация рассеивающей плотности растворителя достигается добавлением в него малоактивных веществ, таких как глицерин или сахароза. Однако интервал возможных изменений невелик, например, полная замена воды на глицерин изменяет рассеивающую плотность растворителя всего на 20%.

В случае рассеяния нейтронов контраст можно менять путем подбора изотопного состава среды. Этот метод особенно эффективен при изучении органических и биологических объектов, в состав которых в больших количествах входит водород. Изменение соотношения водорода и дейтерия, реально – соотношения легкой и тяжелой воды, в водном растворителе, позволяет радикально менять контраст. Действительно, из расчета, проведенного в § 2.3, следует, что рассеивающие плотности легкой и тяжелой воды равны  $\rho_0(\text{H}_2\text{O}) = -0.56 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ ,  $\rho_0(\text{D}_2\text{O}) = +6.40 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ , соответственно. ПДР основных компонент биологических объектов (липидов, белков, РНК, ДНК и др.) изменяется в пределах  $(0.5 - 3.6) \text{ см}^{-2}$ , если эти компоненты находятся в нативном (водородосодержащем) состоянии. Таким образом, если частицы состоят из комбинаций этих компонент, то малоугловое рассеяние от каждой из них может быть доведено до очень низкого уровня соответствующим подбором смеси  $\text{H}_2\text{O}$  и  $\text{D}_2\text{O}$  в растворителе. Примеры определения «*точки компенсации*», т.е. относительного содержания  $\text{H}_2\text{O}$  и  $\text{D}_2\text{O}$  в растворителе можно найти в [Останевич, Сердюк, 1982, Свергун, Фейгин, 1986].

Использование этого метода для изучения структуры биологических объектов несколько осложняется тем, что возможен (и он, действительно, происходит) обмен дейтерием между растворителем и частицей. В какой-то степени этот эффект можно учесть, предполагая какое количество водорода в

частице может быть заменено на дейтерий, но точные цифры, в общем случае, неизвестны. Тем не менее, такого рода расчеты сделаны (доля обмененных атомов оказывается около 20%), построены соответствующие графики (см., напр. [Сердюк и др., 2010]) и найдены точки компенсации для различных типов биологических молекул.

### 14.3.2. Метод базисных функций

Для анализа малоуглового рассеяния разбавленным раствором монодисперсных, идентичных, но неоднородных по объему частиц развит подход, получивший название «метод базисных функций» [Свергун, Фейгин, 1986, Авдеев, Аксенов, 2010]. В нем предполагается, что распределение ПДР для частицы можно представить в виде двух слагаемых  $\rho(r) = \langle \rho \rangle + \rho_F(r)$ , где  $\langle \rho \rangle$  – средняя ПДР, т.е.

$$\langle \rho \rangle = V^{-1} \cdot \int \rho(r) dV, \quad (14.3.1)$$

а  $\rho_F(r)$  – флуктуационная плотность, определяемая из условия

$$\int \rho_F(r) dV = 0. \quad (14.3.2)$$

Вводя такую  $\rho(r)$  в (14.2.1), учитывая растворитель с  $\rho_0$  и переходя к интенсивности рассеяния, получаем:

$$I(q) = I_F(q) + \Delta\rho \cdot I_{VF}(q) + (\Delta\rho)^2 \cdot I_V(q), \quad (14.3.3)$$

где обозначено  $\Delta\rho = (\langle \rho \rangle - \rho_0)$ ,  $I_V$  – рассеяние на однородной частице с рассеивающей плотностью  $\langle \rho \rangle$ ,  $I_F$  – рассеяние на флуктуациях плотности,  $I_{VF}$  – перекрестный член. Зависимости  $I_V(q)$ ,  $I_F(q)$  и  $I_{VF}(q)$  принято называть *базисными функциями*. Очевидно, что их можно определить, измерив, по крайней мере, три кривых  $I(q)$  при разных значениях контраста  $\Delta\rho$ . Важно, что эта процедура позволяет выделить вклад от формы частицы и провести его анализ вычислением инвариантов и моделированием.

Представление  $\rho(r)$  в виде двух слагаемых можно вставить в выражение для пространственной парной корреляционной функции и получить формулу, аналогичную (14.3.3):

$$G(\vec{r}) = \int \rho(\vec{u}) \rho(\vec{u} + \vec{r}) d\vec{u} = G_F(\vec{r}) + \Delta\rho \cdot G_{VF}(\vec{r}) + (\Delta\rho)^2 \cdot G_V(\vec{r}), \quad (14.3.4)$$

где  $G_V$  – корреляционная функция для однородной частицы с произвольной формой,  $G_F$  – корреляционная функция для неоднородностей,  $G_{VF}$  – перекрестный член.

### 14.3.3. Концентрированные системы

Если раствор одинаковых частиц не является сильно разбавленным, то при расчете интенсивности необходимо учесть возможную интерференцию волн,

рассеянных на разных частицах. Для этого их следует просуммировать с соответствующими фазовыми множителями (рис. 14.3.2):

$$f(\vec{q}) \sim \sum_m \exp(-i\vec{q}\vec{R}_m) \cdot \int \rho(\vec{r}) \exp(-i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r}, \quad (14.3.5)$$

здесь интеграл берется по объему одной частицы, сумма берется по всем частицам в растворе,  $\vec{R}_m$  – вектор фиксирующий положение частицы в растворе. Поскольку все частицы одинаковые и к тому же производится усреднение по их ориентациям, то интеграл можно вынести из под знака суммы. Переходя к интенсивности рассеяния, имеем:

$$I(q) \sim |f(q)|^2 \sim |F(q)|^2 \cdot \sum_m \sum_n \langle \exp(-i\vec{q}\vec{R}_m) \cdot \exp(i\vec{q}\vec{R}_n) \rangle, \quad (14.3.6)$$

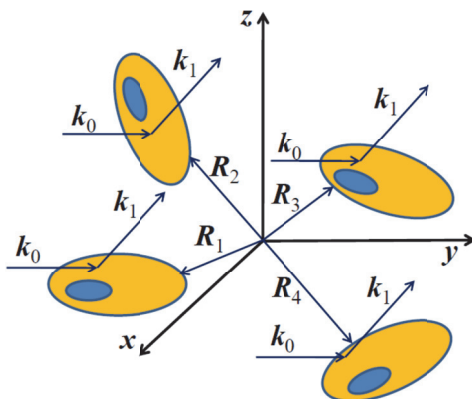
где  $F(\vec{q}) = \int \rho(\vec{r}) \exp(-i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r}$  – формфактор частицы. Вычисление сумм в (14.3.6) приводит к выражению:

$$I(q) \sim |f(q)|^2 \sim |F(q)|^2 \cdot \left\{ 1 - 4\pi N/V_s \cdot \int r^2 [1 - P(r)] \cdot \sin(qr)/(qr) dr \right\}, \quad (14.3.7)$$

где  $V_s$  – объем раствора,  $N$  – число частиц в растворе, интеграл берется от 0 до  $\infty$ ,  $P(r)$  – вероятность нахождения частицы на расстоянии  $r$  от начала координат, нормированная так, что  $P(r) \rightarrow 1$  при  $r \rightarrow \infty$ .

Вид функции (14.3.7) можно оценить, предполагая форму частиц близкой к шарообразной и полагая  $P(r) = 0$  при  $r \leq 2R_0$  и  $P(r) = 1$  при  $r > 2R_0$ . В этом случае интеграл в (14.3.7) сводится к формуле (14.2.4), в которой вместо  $R$  следует подставить  $2R_0$ . Окончательно

$$I(q) \sim |f(q)|^2 \sim |F(q)|^2 \cdot \left\{ 1 - 4\pi N/(3V_s) \cdot (2R_0)^3 \cdot F_B(q) \right\}, \quad (14.3.8)$$



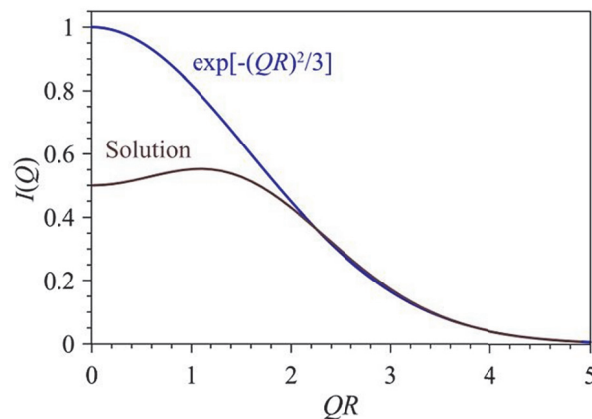
**Рис. 14.3.2.** К расчету эффекта интерференции волн, рассеянных на неоднородных и случайно ориентированных частицах. Первичная и рассеянная волны задаются волновыми векторами  $\vec{k}_0$  и  $\vec{k}_1$ , положения частиц в пространстве фиксируется векторами  $\vec{R}_j$ . Для нахождения результирующей волны необходимо просуммировать (проинтегрировать) по рассеивающим центрам внутри частиц, а затем по всем частицам с учетом фазовых сдвигов, определяемых векторами  $\vec{R}_j$ .

Поскольку  $4\pi/3 \cdot NR_0^3 = V_p$  – объем, занятый частицами, то  $\delta = V_p/V_s$  – доля объема, занятая частицами и (14.3.8) можно переписать в виде:

$$I(q) \sim |F(q)|^2 \cdot [1 - 8\delta \cdot F_B(2qR_0)], \quad (14.3.9)$$

где  $F_B(2qR_0) = 3[\sin(2qR_0) - (2qR_0)\cos(2qR_0)]/(2qR_0)^3$ . Функция  $F_B(x)$  быстро спадает с ростом  $x$ , поэтому основные эффекты, связанные с интерференцией волн, рассеянных на разных частицах, проявляются в основном при малых ( $qR_0$ ) (рис. 4.3.3).

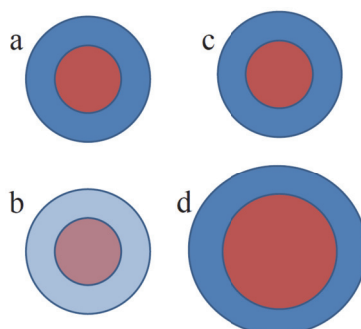
При больших концентрациях ( $\delta > 1/8$ ) формула (14.3.7) приводит к физически невозможному результату  $I(q) < 0$ . Это связано с тем, что вероятность  $P(r)$  предполагалась независимой от объема, приходящегося на одну частицу. Для более корректного учета эффектов межчастичной интерференции, т.е. фактически рассмотрения рассеяния на жидкости, следует использовать аппарат корреляционных функций.



**Рис. 14.3.3.** Эффект интерференции волн, рассеянных на неоднородных и случайно ориентированных частицах в растворе. Без учета интерференции при малых ( $qR$ ) интенсивность рассеяния описывается кривой Гинье. Учет интерференции (6% раствор) приводит к уменьшению интенсивности рассеяния при малых ( $qR$ ).

#### 14.3.4. Полидисперсные системы

Под полидисперсными системами подразумевается набор частиц, основные характеристики которых (форма, размер, структура) непостоянны. Обычно выделяют структурную и размерную полидисперсности (рис. 14.3.4). Структурные вариации обычны для сложных белковых комплексов. Вариация размера частиц всегда присутствует в кристаллических телах, например, при образовании упорядоченных кластеров в неупорядоченной матрице или при фазовом расслоении сплавов.



**Рис. 14.3.4.** Частицы со структурной (а, b) и размерной (с, d) полидисперсностью. Цвет символизирует величину рассеивающей плотности.

Для характеристики полидисперсного набора частиц приходится вводить дополнительные функции распределения. Так, в случае вариации размеров вводится функция  $D(R)$ , которая дает долю частиц с размером  $R$  в пределах  $dR$ . Соответственно, для извлечения из малоугловых данных информации о форме частицы необходимо знание распределения  $D(R)$ . Наоборот, если есть представление о форме частицы, то, в принципе, может быть определена функция  $D(R)$ .

Наличие того или иного вида полидисперсности необходимо учитывать при анализе инвариантов малоуглового рассеяния, радиусов инерции, базисных функций и т.д. Подробное изложение используемых в этих случаях приближений содержится в [Avdeev, 2007].

#### 14.3.5. Малоугловое рассеяние на магнитных неоднородностях

Магнитное взаимодействие между магнитным моментом нейтрона и магнитными неоднородностями среды позволяет методом МУРН получать информацию о структуре этих неоднородностей. В настоящее время малоугловое магнитное рассеяние широко используется при изучении материалов с контролируемым эффектом памяти формы, флуктуаций намагниченности в ферромагнитных материалах, магнитных жидкостей и т.д.

Для неполяризованного пучка нейтронов магнитная составляющая интенсивности рассеяния,  $I_M$ , добавляется к ядерной,  $I_N$ , т.е.

$$I(q) \sim I_N(q) + I_M(q). \quad (14.3.10)$$

Для неполяризованного пучка нейтронов магнитная компонента может быть записана в следующем виде:

$$I_M(q) \sim M^2 \cdot F^2(q) \cdot \sin^2 \varphi, \quad (14.3.11)$$

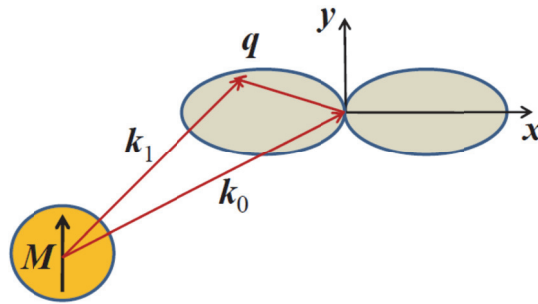
где  $M$  – полный магнитный момент частицы,  $F(q)$  – формфактор магнитной части частицы,  $\varphi$  – угол между направлением магнитных моментов атомов и вектором  $\vec{q}$ . Если магнитные моменты частиц неупорядочены по направлениям, то (14.3.10) следует усреднить по  $\varphi$  и появляется коэффициент  $2/3$ . Накладывая внешнее

магнитное поле можно добиться коллинеарного упорядочения моментов частиц и возникает зависимость  $I_M$  от  $\varphi$ , проявляющаяся в анизотропии распределения интенсивности в плоскости детектора ( $x, y$ ) (рис. 14.3.5). При условии, что внешнее поле не сильно изменяет внутреннюю магнитную структуру частиц, этот эффект позволяет наиболее надежно провести разделение вкладов ядерного и магнитного рассеяния в полную интенсивность.

Дополнительные возможности анализа структуры магнитных частиц появляются при использовании поляризованного пучка нейтронов. В этом случае нет усреднения по ориентациям магнитных моментов нейтронов и накладывая внешнее магнитное поле можно измерить интенсивности, соответствующие параллельной и антипараллельной ориентациям магнитных моментов нейтрона и частицы:

$$I(q)^\pm \sim I_N(q) + I_M(q) \cdot \sin^2 \varphi \pm P \cdot M \cdot F_N(q) \cdot F_M(q) \cdot \sin^2 \varphi, \quad (14.3.12)$$

где  $P$  – степень поляризации первичного пучка нейтронов.



**Рис. 14.3.5.** Индикатриса рассеяния при взаимодействии магнитных моментов нейтронов и магнитного момента частицы.

Примеры использования внешнего магнитного поля при анализе структуры магнитных жидкостей приведены в обзоре [Авдеев, Аксенов, 2010], а примером анализа магнитных корреляций в немагнитных материалах с магнитными примесями с использованием поляризованных нейтронов является работа [Рунов и др., 2012].

#### § 14.4. Спектрометры малоуглового рассеяния

Общие принципы построения спектрометров малоуглового рассеяния относительно просты и хорошо отработаны. Их главной особенностью является высокое угловое разрешение, позволяющее проводить измерения при малых величинах векторов рассеяния. Диапазон размеров неоднородностей, изучаемых методом МУРН, довольно широк, и, как правило, его невозможно перекрыть на одном спектрометре. Для работы в диапазоне (60 – 6000) Å требуется интервал

векторов рассеяния  $(0.001 - 0.1) \text{ \AA}^{-1}$ , который может быть сравнительно легко реализован с использованием стандартной геометрии – большие пролетные расстояния источник – образец и образец – детектор и хорошая коллимация пучка. Расширение диапазона размеров как в меньшую, так и в большую стороны требует специальной организации установки. Например, для изучения неоднородностей, имеющих характерные размеры на уровне  $10 \text{ \AA}$ , лучше подходит работа с тепловым спектром нейтронов, тогда как обычно спектрометры МУРН используют холодные нейтроны. Если размеры неоднородностей превышают  $1 \text{ мкм}$ , то используется метод двойного монохроматора. С его помощью удастся изучать объекты с размерами до  $D \sim 10 \text{ мкм}$ .

В соответствии с возможностью работы на двух основных типах нейтронных источников – стационарных и импульсных – спектрометры малоуглового рассеяния разделяются на  $\lambda_0$ - и TOF-МУРН установки. Их общей особенностью является большая протяженность в длину, что связано с необходимостью иметь хорошую коллимацию первичного пучка. Помимо полного потока нейтронов на образце, основными характеристиками спектрометров МУРН являются диапазон длин волн, степень монохроматизации и величина коллимации первичного пучка, диапазон переданных импульсов и размер пучка на образце. Основная трудность стандартных спектрометров МУРН заключается в необходимости работать вблизи прямого пучка, содержащего быстрые нейтроны и  $\gamma$ -лучи, из-за чего возникают проблемы с фоном. С помощью изогнутого нейтронотода эти компоненты фона можно эффективно подавить, но возникает заметная зависимость функции разрешения от длины волны, которую необходимо учитывать. Еще одним фактором, который приходится учитывать, является гравитационный эффект, что связано с большой протяженностью спектрометров МУРН.

Дифференцируя выражение для вектора рассеяния и предполагая гауссовы распределения для неопределенностей по длине волны и по углу рассеяния, получаем:

$$(\Delta q/q)^2 = (\Delta\lambda/\lambda)^2 + (\Delta\theta/\theta)^2, \quad (14.4.1)$$

где учтено, что при малых углах рассеяния  $\text{tg}\theta \approx \theta$ . Эту формулу можно использовать для оценки пролетных расстояний, необходимых для задания коллимации первичного пучка нейтронов. Полагая, что приемлемым уровнем неопределенности в измерении вектора рассеяния является 20% и что вклад обоих слагаемых в (14.4.1) должен быть примерно одинаков, получаем, что неопределенность в угле рассеяния не должна превышать  $\Delta\theta \approx 0.2\theta/\sqrt{2}$ . При линейных размерах источника и образца  $D_1$  и  $D_2$  и расстоянии между ними  $L_1$  неопределенность угла рассеяния составляет  $(D_1 + D_2)/L_1$  и, следовательно, должно выполняться неравенство:

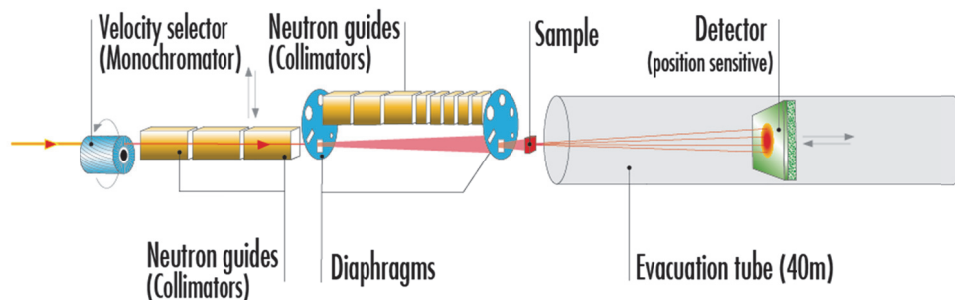
$$L_1 \geq \sqrt{2} \cdot (D_1 + D_2)/(0.2\theta), \quad (14.4.2)$$

из которого можно оценить минимальное расстояние между источником и образцом. При  $D_1 = 20$  см,  $D_2 = 1$  см и  $\theta = 5^\circ$  получаем  $L_1 \geq 17$  м.

Для сохранения необходимой разрешающей способности при регистрации рассеяния с малыми  $q$  требуется уменьшение размеров источника и образца либо увеличение расстояния между ними либо то и другое вместе. В любом случае, приведенная оценка показывает, что размеры спектрометров МУРН по длине составляют десятки метров, причем это в равной степени относится как к  $\lambda_0$ -, так и к ТОФ-спектрометрам. Очевидно, что радикальное отличие нейтронных и рентгеновских (синхротронных) спектрометров в величине расстояний между источником, образцом и детектором связано с размером источника нейтронов, который в десятки раз больше, чем в случае рентгеновского или синхротронного излучений.

#### 14.4.1. Спектрометр МУРН на стационарном источнике

Схема классического  $\lambda_0$ -спектрометра МУРН D11, действующего на реакторе ILL (Гренобль, Франция) приведена на рис. 14.4.1. Его первая версия была создана еще в середине 1970-х годов на источнике холодных нейтронов. Полная длина спектрометра составляла 80 м, а среднюю длину волны можно было выбирать из диапазона (2 – 20) Å. За прошедшее время D11 несколько раз модернизировался, хотя его общая концепция оставалась неизменной. Хотя D11 является спектрометром широкого профиля, но около 60% всех экспериментов на нем выполняются в области так называемой «мягкой материи» (белки, рибосомы, липидные мембраны, полимеры и т.д.) и он оптимизирован на работу в области малых векторов рассеяния.



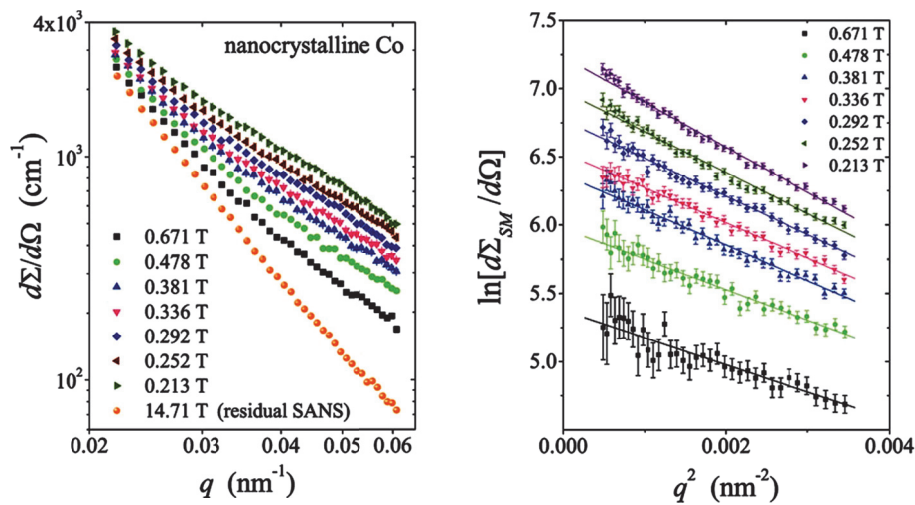
**Рис. 14.4.1.** Схема спектрометра МУРН (D11, ILL) на стационарном источнике нейтронов. С помощью селектора скоростей выбираются длина волны и степень монохроматизации пучка. Нейтроновод и система коллиматоров определяют размер и расходимость пучка на образце. Рассеянные нейтроны регистрируются двумерным ПЧД, который может перемещаться в вакуумной трубе в пределах 38 м.

Выбор средней длины волны из интервала (4.5 – 40) Å осуществляется механическим селектором скоростей, обеспечивающим  $\Delta\lambda/\lambda \approx 0.1$ . Нейтроновод



и коллимационная система позволяют выбрать одно из 12 возможных мест расположения образца в интервале расстояний от 1.5 до 40 м от начала нейтронотода. Поперечное сечение нейтронотода – переменное, максимальный размер  $50 \times 45 \text{ мм}^2$ , типичный размер образца –  $10 \times 10 \text{ мм}^2$ . Расстояние между образцом и детектором может изменяться в интервале (1.2 – 39) м. Используется двухкоординатный позиционно-чувствительный  $^3\text{He}$ -детектор площадью  $96 \times 96 \text{ см}^2$  и размером пикселя  $7.5 \times 7.5 \text{ мм}^2$ .

Большие диапазоны для выбора средней длины волны, места образца и позиции детектора обеспечивают возможность работы на D11 в исключительно широком диапазоне векторов рассеяния, а именно, от  $3 \cdot 10^{-4}$  до  $1 \text{ \AA}^{-1}$ , что соответствует диапазону неоднородностей  $D \approx (6 - 21000) \text{ \AA}$ . Кроме того, большое возможное количество комбинаций этих величин позволяют проводить на D11 исследования разнообразных и сильно различающихся по характеристикам и свойствам объектов, от биологических до материаловедческих.



**Рис. 14.4.2.** Слева: сечение рассеяния  $d\Sigma/d\Omega$  нанокристаллического порошка Co как функция вектора рассеяния и величины внешнего магнитного поля (дважды логарифмический масштаб). Нижняя зависимость измерена в поле насыщения. Справа: сечение рассеяния  $d\Sigma_{SM}/d\Omega$  в координатах Гинье при разных величинах внешнего магнитного поля. Рисунок из работы [Michels et al., 2020].

В качестве примера работ, выполненных на D11, рассмотрим результаты эксперимента по анализу применимости приближения Гинье к магнитному малоугловому рассеянию [Michels et al., 2020]. Образец представлял собой порошок кобальта, приготовленный таким образом, что средний размер кристаллитов составлял  $D \approx 9.5 \text{ нм}$ . Пучок нейтронов формировался с  $\lambda_0 = 6 \text{ \AA}$ , детектор был помещен на расстоянии 38 м от образца, что обеспечивало диапазон векторов рассеяния от  $0.016$  до  $0.2 \text{ нм}^{-1}$ . Эксперимент проводился при наложении

на образец магнитного поля, причем поле было ориентировано вдоль первичного пучка, т.е. параллельно вектору  $\vec{k}_0$ . Из проведенных расчетов следовало, что при такой геометрии эксперимента малоугловое магнитное рассеяние должно быть связано с флуктуациями ориентаций магнитных моментов  $S_0$  относительно  $\vec{k}_0$ , и эти флуктуации должны уменьшаться при увеличении напряженности магнитного поля и исчезать совсем в сильном поле.

Некоторые результаты эксперимента представлены на рис. 14.4.2. Показаны зависимости полного макроскопического сечения рассеяния от величины приложенного поля. Полное сечение складывается из ядерного и магнитного и его измерение в поле насыщения позволяет определить независимую от поля ядерную компоненту. Вычитая ее из полного сечения, авторы работы получали магнитное сечение  $d\Sigma_{SM}/d\Omega$  как функцию величины поля. Анализ  $d\Sigma_{SM}/d\Omega$  в координатах Гинье позволил найти зависимость магнитного радиуса инерции от величины поля и проверить ее соответствие предварительным расчетам.

#### 14.4.2. Спектрометр МУРН на импульсном источнике

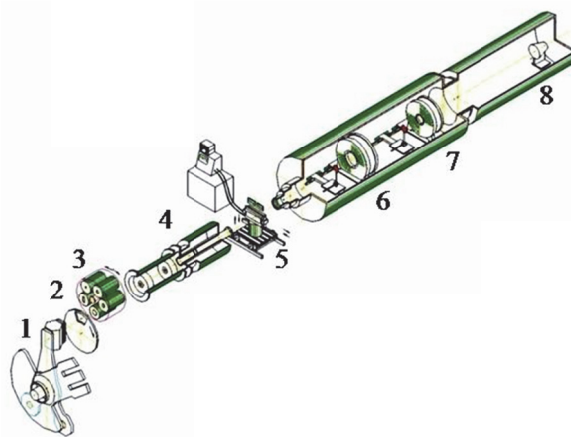
Точно так же, как в случае дифракции, в методе МУРН импульсность источника открывает возможность регистрации интенсивности как функции двух переменных – угла рассеяния и длины волны. Длина волны связана с временем пролета нейтрона соотношением:  $\lambda = t/(C \cdot L)$ , где  $L$  – полное пролетное расстояние от источника нейтронов до детектора,  $C = 252.7785$ , если время измеряется в мкс, расстояние в м, а длина волны в Å.

Неопределенность в  $\lambda$  (степень монохроматизации) определяется из формулы:  $(\Delta\lambda/\lambda) = (\Delta t_0/t)$ , где  $\Delta t_0$  – ширина нейтронного импульса от источника. На источниках с коротким импульсом ( $\Delta t_0 < 100$  мкс) даже для сравнительно коротких пролетных расстояний ( $L < 20$  м) и малых длин волн ( $\lambda \approx 2$  Å) степень монохроматизации составляет ~1%, что намного меньше, чем обычный вклад в  $(\Delta q/q)$  от угловых неопределенностей. На источниках с длинным импульсом ( $\Delta t_0 > 400$  мкс) вклад в разрешающую способность спектрометра от  $(\Delta t_0/t)$  при малых длинах волн становится сравнимым с вкладом от угловых неопределенностей, но, поскольку  $\Delta t_0 \approx \text{const}$ , то он быстро уменьшается с увеличением  $\lambda$ . Таким образом, основное различие в методе МУРН на стационарном и импульсном источниках сводится к способу и степени монохроматизации первичного пучка нейтронов.

В случае изотропного рассеяния  $I(\theta, \lambda)$  переводится в стандартную зависимость  $I(q)$ , но возможность анализа  $I(q)$  при фиксированной длине волны или, наоборот, при фиксированном угле рассеяния позволяет контролировать корректность введения поправок, зависящих от  $\theta$  или  $\lambda$ . Например, может быть

проведен анализ требуемой независимости радиуса инерции  $R_g$  от этих переменных.

Схема и основные узлы спектрометра МУРН на импульсном источнике нейтронов лишь незначительно (нет необходимости в селекторе скоростей) отличаются от таковых на стационарном реакторе. На рис. 14.4.3 показано расположение узлов ТОФ-спектрометра ЮМО (назван в честь Ю.М.Останевича), действующего на реакторе ИБР-2 (Дубна).



**Рис. 14.4.3.** Схема спектрометра МУРН (ЮМО, ИБР-2) на импульсном источнике нейтронов. Сразу за активной зоной (1) реактора размещен механический прерыватель (2), перекрывающий пучок на время между импульсами. За ним располагаются коллимационная система (3, 4), задающая угловую расходимость пучка нейтронов, и образец с устройствами, обеспечивающими необходимые внешние условия (температура, влажность и др.) (5). Рассеянные нейтроны регистрируются двумя кольцевыми детекторами с отверстиями в центре (6, 7). В конце вакуумной трубы находится детектор прямого пучка (8).

Детекторная система его первой версии (рис. 14.1.1) состояла из нескольких  $^3\text{He}$ -счетчиков, что определяло «щелевую» геометрию системы коллимации пучка. В конце 1970-х годов спектрометр ЮМО был переведен в режим аксиальной геометрии. Функция разрешения ЮМО в основном определяется угловым вкладом, поскольку вклад от импульса ИБР-2 мал. Полная длина ЮМО составляет около 40 м, расстояние образец – детектор может изменяться в интервале (2 – 13) м, а длина волны – в интервале (0.5 – 8) Å. Эти параметры определяют доступный диапазон переданных импульсов, составляющий  $(8 \cdot 10^{-3} - 0.5) \text{ \AA}^{-1}$  и соответствующий диапазон размеров исследуемых объектов (10 – 750) Å. Важной особенностью ЮМО является использование двух кольцевых детекторов, имеющих отверстие в центре для пропускания прямого пучка. Это позволяет заметно улучшить фоновые условия и расширить диапазон по вектору рассеяния. Первый вариант детектора имел внешний и внутренний диаметры 73 см и 25 см и с помощью концентрических медных перегородок был разделен на 8 независимых камер, по центру которых

проходила анодная нить. Детектор заполнялся смесью  $^3\text{He}$  (2.5 атм) и  $\text{Ar}$  (1.5 атм), обеспечивал эффективность регистрации тепловых нейтронов на уровне 75% и позволил примерно в 20 раз повысить светосилу спектрометра по сравнению с щелевой геометрией при одновременном улучшении разрешения по углу рассеяния.

В работе [Serdyuk, 1995] дано короткое описание спектрометра ЮМО в аксиальной геометрии и проведено сравнение результатов измерения двух образцов с сильно различающимися радиусами инерции – рибосомы 70S *E. coli* ( $R_g \approx 90 \text{ \AA}$ ) и белка EF-Tu ( $R_g \approx 25 \text{ \AA}$ ), полученными на ЮМО и D11. Сравнение показало, что результаты для  $R_g$ , получаемые на этих спектрометрах, практически совпадают как по абсолютной величине, так и по точности измерения (максимальное различие в измеренных значениях  $R_g$  составляет около 1.2%). Время, требуемое для достижения заданной точности измерения, примерно одинаково на обоих спектрометрах, если образец слабо рассеивает ( $d\Sigma/d\Omega \sim 0.05 \text{ см}^{-1}$ ). Для сильно рассеивающих образцов D11 имеет некоторое преимущество. Общий вывод состоит в том, что как по затрачиваемому на эксперименты времени, так и по качеству результатов TOF-спектрометр ЮМО и  $\lambda_0$ -спектрометр D11 сравнимы, несмотря на то, что средние мощности источников различаются почти в 30 раз (2 МВт и 57 МВт). Однако более хорошие коллимационные условия на D11 позволяют работать на нем при существенно меньших векторах рассеяния.

#### 14.4.3. Двухкристальный спектрометр МУРН

Кроме широко распространенных спектрометров МУРН с длинной пролетной базой и аксиальной геометрией коллиматоров, возможны еще два (менее стандартных) способа организации малоуглового эксперимента, а именно, в виде двухкристального дифрактометра и спектрометра с фокусировкой. Сравнительные характеристики этих трех типов установок подробно проанализированы в работе [Alefeld et al., 1989]. Было показано, что наилучшими характеристиками (светосилой и разрешением) при сравнительно небольшой полной протяженности ( $\leq 10 \text{ м}$ ) может обладать спектрометр, построенный с использованием тороидального зеркала, с помощью которого входное отверстие для пучка нейтронов фокусируется на детекторе.

Оказалось, однако, что доступное в то время (конец 1980-х годов) качество нейтронных зеркал не позволяет в полной мере реализовать преимущества фокусирующей геометрии. Проблема была связана с неизбежной шероховатостью поверхности зеркала, приводящей к возникновению «гало» вокруг фокусного пятна, интенсивность которого составляла около 1% от интенсивности в центре. Столь большой фон не позволял надежно измерять слабые эффекты малоуглового рассеяния. Создание нейтронных зеркал более высокого качества, возможно, позволит реанимировать идею спектрометра с фокусировкой, но пока до практической реализации дело не дошло.

Продвижение в диапазон размеров  $D > 10^4 \text{ \AA}$  ( $>1 \text{ мкм}$ ) в методе МУРН возможно, если анализ рассеянного пучка ведется при  $\theta < 1$  угл. мин. Это можно реализовать, используя последовательное отражение пучка от двух совершенных монокристаллов (обычно Si), первый из которых является монохроматором, а второй – анализатором. При рассеянии на неоднородностях исследуемого образца, который помещается между кристаллами, происходит угловое уширение пучка, регистрируемое анализатором. Поскольку ширина кривой отражения от совершенного кристалла составляет величину порядка 1 угл. секунды ( $1''$ ), то появляется возможность проводить измерения при очень малых углах рассеяния.

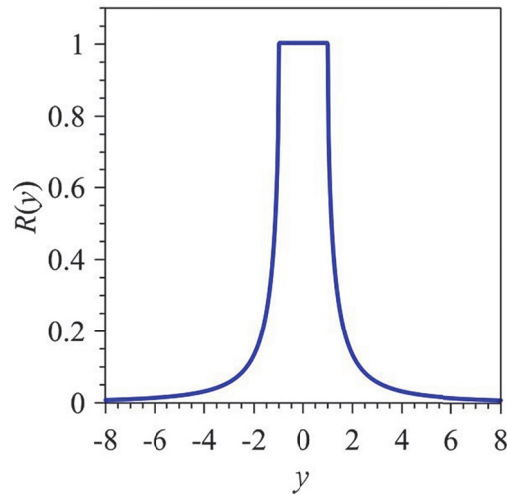
При однократном отражении от совершенного кристалла конечной толщины для коэффициента отражения справедлива формула:

$$R(y) = 1, \text{ при } |y| \leq 1, \quad R(y) = 1 - (1 - y^{-2})^{1/2}, \text{ при } |y| > 1, \quad (14.4.3)$$

где  $y = \Delta\theta_B / \Delta\theta_D(\lambda)$ ,  $\Delta\theta_B = \theta - \theta_B$  – отклонение от угла Брэгга,  $\theta_B$ , здесь  $\theta$  – половина угла рассеяния,  $\Delta\theta_D(\lambda)$  – ширина (FWHM) распределения  $R(y)$ . Функция  $\Delta\theta_D(\lambda)$  рассчитывается методами динамической теории дифракции, а именно, в геометрии отражения:

$$\Delta\theta_D(\lambda) = \lambda^2 |F_{hkl}| / [\pi V_c \sin(2\theta_B)], \quad (14.4.4)$$

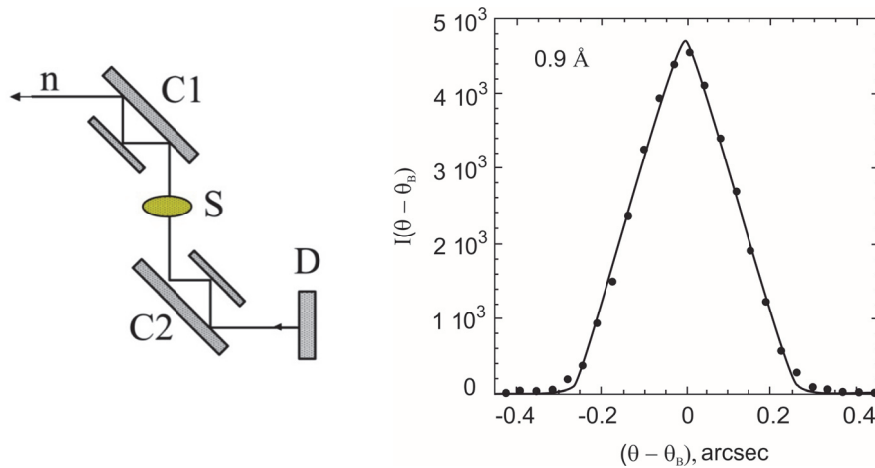
где  $F_{hkl}$  – структурный фактор,  $V_c$  – объем элементарной ячейки кристалла. Для длины волны  $\lambda \approx 2 \text{ \AA}$  и, например, плоскости (220) кремния расчет дает величину  $\Delta\theta_D \approx 2''$ . Особенностью функции (14.4.3), получившей название «столика Дарвина» (рис. 14.4.4), является довольно быстрый спад при  $1 \leq y < 2$ , но затем она ведет себя как  $1/y^2$ , и, например, при  $y = 5$  все еще составляет около 0.02.



**Рис. 14.4.4.** «Столик Дарвина» при однократном отражении от совершенного кристалла конечной толщины.

Поэтому вместо простейшей конфигурации с двумя кристаллами применяют более сложную, с несколькими отражениями, при которой коэффициент отражения превращается в  $R_n = (R(y))^n$ , где  $n$  – число отражений. Варианты такой системы (до  $n = 9$ ) были предложены и проверены в [Schwan et al., 1985].

Практической реализацией двухкристального спектрометра ультрамалоуглового рассеяния нейтронов (USANS в англоязычном варианте) является дифрактометр DCD (SNS, Oak Ridge, США) [Agamalian et al., 2018]. Схема его анализатора и монохроматора (монокристаллы кремния), с шестью последовательными отражениями представлена на рис. 14.4.5. Поскольку SNS – импульсный источник нейтронов, то одновременно измеряются несколько порядков отражения. В конкретном случае DCD наблюдаются четные порядки отражения от плоскостей (110) Si, вплоть до (12,12,0). Коэффициент отражения  $R_6$  (функция разрешения) для рефлекса (880) также показан на рис. 14.4.5. Из-за коллимационных поправок форма кривой треугольная, экспериментальные точки хорошо описываются расчетной функцией. В соответствии с (14.4.4) ширина кривой качания квадратично зависит от длины волны и для наблюдающихся на DCD шести порядков отражения она изменяется от 5.3'' для (220) до 0.10'' для (12,12,0).

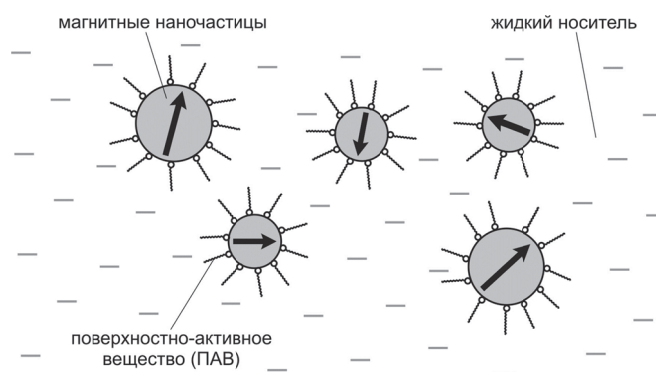


**Рис. 14.4.5.** Слева: схема спектрометра МУРН на совершенных кристаллах. Обозначены: C1 – кристаллы-монохроматоры, C2 – кристаллы-анализаторы, S – образец, D – детектор. Кристалл C2 может вращаться вокруг вертикальной оси. Масштабы не соблюдены. Справа: кривая качания для 8-го порядка отражения от плоскостей (110) монокристаллов кремния ( $\lambda \approx 0.9 \text{ \AA}$ ). Рисунок из работы [Agamalian et al., 2018].

Секундный диапазон ширины функции разрешения спектрометров МУРН типа USANS позволяет вести практические исследования объектов с размерами вплоть до 10 мкм. Информация, получаемая на этих спектрометрах, является комплементарной по отношению к исследованиям с помощью обычной микроскопии.

### § 14.5. Задачи, решаемые на спектрометрах МУРН

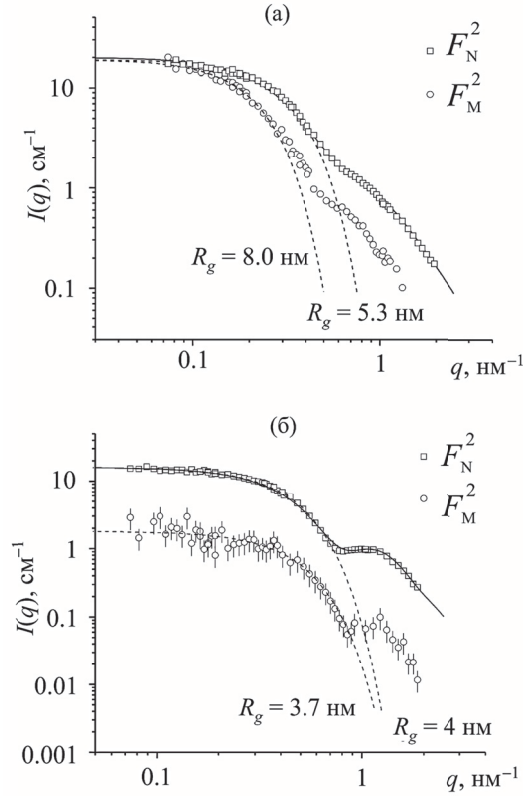
Уже упоминалось, что малоугловое рассеяние относится к структурным методам низкого разрешения в том смысле, что с его помощью определяются не координаты атомов, как в случае дифракции на кристаллах, а надатомная структура вещества. Это означает, что анализу подлежат некоторые геометрические характеристики неоднородностей среды (форма, характерные размеры) и их морфология (распределение составных частей). Так же, как в случае дифракции на кристаллах, научные задачи малоуглового рассеяния исключительно разнообразны и охватывают разделы от молекулярной биологии до материаловедения. Однако в отличие от структурных дифрактометров, варианты конструкции спектрометров МУРН фактически включают только два типа – протяженные установки с точечной геометрией коллимационной системы и двухкристальные дифрактометры. Их адаптация для решения какой-то конкретной задачи осуществляется настройкой параметров, т.е. выбором длины волны, пролетных расстояний, коллимации, которые, как правило, могут варьироваться в очень широких пределах. Соответственно, постановка малоуглового эксперимента практически одинакова как при изучении биологических макромолекул, так и при решении технологических материаловедческих задач. С другой стороны, методы обработки экспериментальной информации отличаются большим разнообразием и постоянно развиваются.



**Рис. 14.5.1.** Упрощенная структура магнитной жидкости. Магнитные полидисперсные наночастицы с размерами в пределах (20 – 200) Å покрыты оболочкой ПАВ. Магнитные моменты частиц неупорядочены, если внешнее магнитное поле отсутствует.

Рассмотрим характерные примеры исследований, выполненных методом МУРН и хорошо иллюстрирующих его возможности и особенности. На рис. 14.5.1 схематически показана структура *магнитной жидкости* (МЖ), которая является жидкой дисперсией магнитных частиц с характерным размером около 100 Å. Для предотвращения слипания частицы покрываются стабилизирующим слоем какого-либо поверхностно-активного вещества (ПАВ).

Магнитные жидкости широко применяются в технических устройствах, известны также их медико-биологические приложения. Научными задачами в исследованиях МЖ методом МУРН является определение структурных характеристик МЖ, их поведения при использовании различных ПАВ и эффектов, возникающих при наложении внешнего магнитного поля. Изложение решения этих задач дано в обзоре [Авдеев, Аксенов, 2010].



**Рис. 14.5.2.** Ядерные и магнитные компоненты интенсивности МУРН от магнитных жидкостей на основе частиц магнетита, покрытых олеиновой (а) и миристиновой (б) кислотами. Сплошные кривые – описание в модели «ядро – оболочка» с учетом полидисперсности. Штриховые кривые – описание в рамках приближения Гинье. Рисунок из работы [Авдеев, 2007].

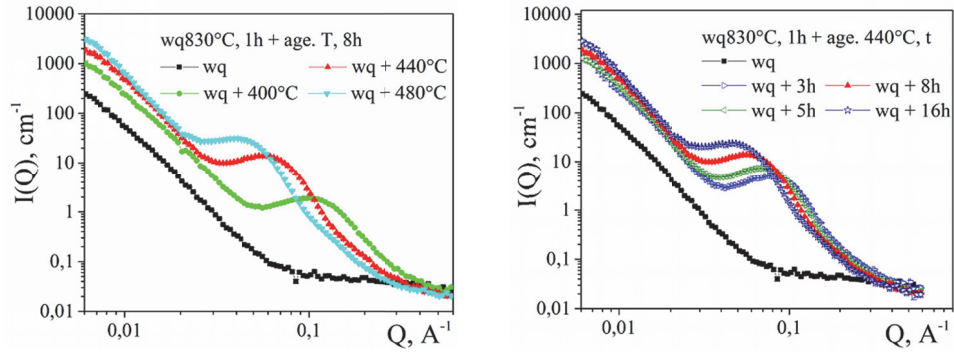
Экспериментальные исследования МЖ выполнялись на нескольких  $\lambda_0$ - и TOF-спектрометрах МУРН, в том числе с использованием поляризованных нейтронов и внешнего магнитного поля ( $\sim 2.5 \text{ Тл}$ ). Изучались МЖ, приготовленные по промышленной технологии, их распределение по размерам соответствовало логнормальному распределению с дисперсией около  $(3 - 4) \text{ \AA}$ . Определенные по рассеянию поляризованных нейтронов формфакторы ядерного и магнитного рассеяния показаны на рис.14.5.2 для МЖ в двух разных стабилизирующих ПАВ. Ядерное рассеяние обрабатывалось в рамках модели



«ядро – оболочка» с учетом размерной полидисперсности. Анализ экспериментальных данных позволил определить основные геометрические параметры компонент. В целом, они оказались в согласии с ожидаемыми величинами и с данными, полученными из МУРН экспериментов с использованием вариации контраста. В частности, для толщины слоя ПАВ для обоих типов кислот была получена величина  $14 \text{ \AA}$ . Неожиданным результатом явилось то, что магнитный радиус инерции оказался больше ядерного в случае стабилизации в олеиновой кислоте. По мнению авторов это указывает на влияние диполь-дипольного взаимодействия на ориентацию магнитных моментов частиц, несмотря на их сравнительно малую концентрацию.

В работах [Sun et al., 2020, 2021] дифракция и малоугловое рассеяние нейтронов были использованы для анализа эффектов, возникающих в сплавах на основе Mn-Cu в ходе их длительной выдержки при разных температурах или в течение разного времени при фиксированной высокой температуре. Изучались составы Mn-13Cu и Mn-19Cu-2Al-4Ni, известные тем, что они обладают высокой демпфирующей способностью и памятью формы. Материаловедческие свойства этих сплавов определяются происходящим в них мартенситным превращением между структурными состояниями с кубической и тетрагональной структурой. В сплавах с высоким содержанием Mn еще одним важным процессом является спинодальное расслоение исходного состава с образованием дисперсных выделений, обогащенных и обедненных марганцем, предшествующее мартенситному превращению. Структурные переходы в этих сплавах хорошо видны в дифракционных спектрах, но для изучения спинодального распада наиболее информативным методом является малоугловое рассеяние.

Эксперименты были проведены на TOF-спектрометре ЮМО (ИБР-2) в диапазоне векторов рассеяния  $q = 0.006 - 0.5 \text{ \AA}^{-1}$ . Интенсивность МУРН, измеренная на сплаве в исходном состоянии, связана с рассеянием на границах кристаллических зерен и хорошо описывается уравнением  $I(q) \sim (\Delta\rho)^2 / q^\alpha$ , где  $\Delta\rho$  – разность рассеивающих способностей границ зерен и их внутренних частей,  $\alpha \approx 3.4$  (при малых  $q$ ). Из рис. 14.5.3 видно, что выдержка сплава Mn-19Cu-2Al-4Ni в течение длительного времени (8 час) при повышенных температурах или выдержка при температуре  $440 \text{ }^\circ\text{C}$  в течение разного времени заметно изменяют вид кривых рассеяния, а именно, в них появляется характерный пик, смещающийся в сторону малых  $q$  при увеличении температуры или времени выдержки. Анализ показал, что это дополнительное рассеяние связано со спинодальным расслоением состава на области, обогащенные (матрица) и обедненные (наночастицы) марганцем. Соответственно, к рассеянию на границах зерен добавляется рассеяние, связанное с контрастом между матрицей и наночастицами. Поскольку когерентная длина рассеяния Mn отрицательна, то изменение контраста достаточно велико, даже если матрица и наночастицы лишь незначительно отличаются по его парциальной плотности.



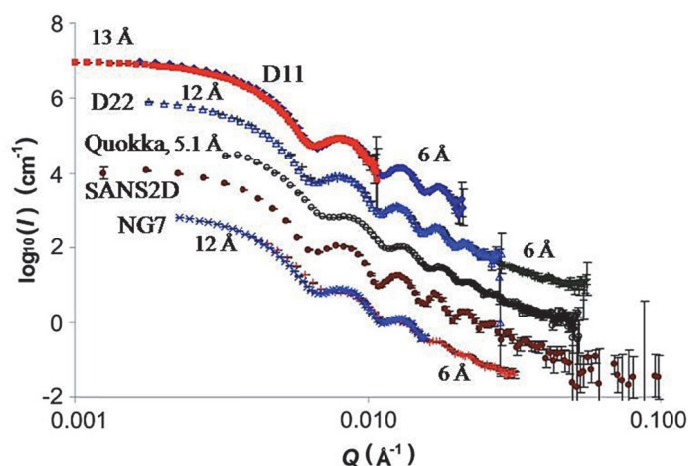
**Рис. 14.5.3.** Интенсивность МУРН (в абсолютных единицах) как функция вектора рассеяния для сплава Mn-19Cu-2Al-4Ni в исходном состоянии (нижняя кривая), после выдержки в течение 8 часов при разных температурах (слева) и после выдержки при температуре 440 °С в течение разного времени (справа). Рисунок из работы [Sun et al., 2020].

Интенсивность МУРН на наночастицах может быть записана следующим образом:

$$I(q) \sim \delta \cdot (\Delta\rho)^2 \cdot F(q) \cdot S(q), \quad (14.5.1)$$

где  $\Delta\rho$  – контраст между наночастицами и матрицей,  $\delta$  – объемная доля наночастиц,  $F(q)$  – их формфактор,  $S(q)$  – функция, учитывающая межчастичную интерференцию (иногда называемая – структурным фактором). В процессе обработки данных было найдено, что для описания формы частиц (формфактора) наиболее подходящей является модель двухосного эллипсоида. Характер изменений кривых рассеяния в целом одинаков при увеличении температуры или времени выдержки, а именно, интерференционный пик постепенно смещается в область меньших  $q$ , что свидетельствует об увеличении размеров наночастиц. Действительно, из количественного анализа интенсивностей МУРН следует, что хотя объемная доля обедненных марганцем областей почти не меняется, их объем растет, а количество, соответственно, уменьшается.

В работе [Rennie et al., 2013] приведены результаты измерений «стандартных» образцов (шарики из полистирольных латексов) на нескольких разных спектрометрах МУРН. Сравнивались данные, полученные на четырех  $\lambda_0$ - и одном TOF-спектрометрах, а именно, D11 (ILL), D22 (ILL), Quokka (ANSTO), NG7 (NIST) и SANS2D (ISIS). На D11, D22 и NG7 эксперимент проводился при двух разных длинах волн (6 и 12 или 13 Å), на Quokka при  $\lambda_0 = 5.1 \lambda$ , на TOF-спектрометре SANS2D в диапазоне (2.2 – 12.5) Å. Ширина распределения по длине волны изменялась от 9% на D11, до 15% на NG7. Все измеренные интенсивности показаны на рис. 14.5.4, на котором хорошо проявляются особенности конкретных спектрометров (диапазоны по  $q$ , уровень фона, повторяемость данных, полученных при разных  $\lambda$ ).



**Рис. 14.5.4.** Кривые рассеяния для образца PS3 A, измеренные на различных спектрометрах МУРН. По вертикальной оси кривые смещены в 10 раз друг от друга. Рисунок из работы [Rennie et al., 2013].

Из результатов сравнения было сделано несколько важных выводов. Было подтверждено, что без введения поправки на разрешающую способность измеряемая величина сечения рассеяния получается искаженной. Так, неожиданно большой разброс по абсолютной величине сечения рассеяния – на уровне 25% между разными спектрометрами – оказался, в основном, связанным с разным разрешением спектрометров. На повторяемость получаемых результатов, влияют и особенности конкретных пакетов программ для обработки экспериментальных данных. Разброс в размере частиц получился сравнительно небольшим ( $\pm 1\%$ ), но неопределенности в распределении по размерам оказались намного большими и требуется дополнительный анализ для выявления всех влияющих на него факторов. Были также выявлены некоторые расхождения в результатах, получаемых в нейтронном и рентгеновском экспериментах, которые удалось объяснить поверхностными эффектами.

#### Рекомендуемая литература к главе 14

Авдеев М.В. и Аксенов В.Л., 2010, *Малоугловое рассеяние нейтронов в структурных исследованиях магнитных жидкостей*, УФН, **180**, 1009.

Нозик Ю.З., Озеров Р.П. и Хениг К., 1979, *Структурная нейтронография*, М.: Атомиздат.

Останевич Ю.М. и Сердюк И.Н., 1982, *Нейтронографические исследования структуры биологических макромолекул*, УФН **137**, 85.

Свергун Д.И. и Фейгин Л.А. 1986, *Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние*, М.: Наука.

## ГЛАВА 15. РЕФЛЕКТОМЕТРИЯ

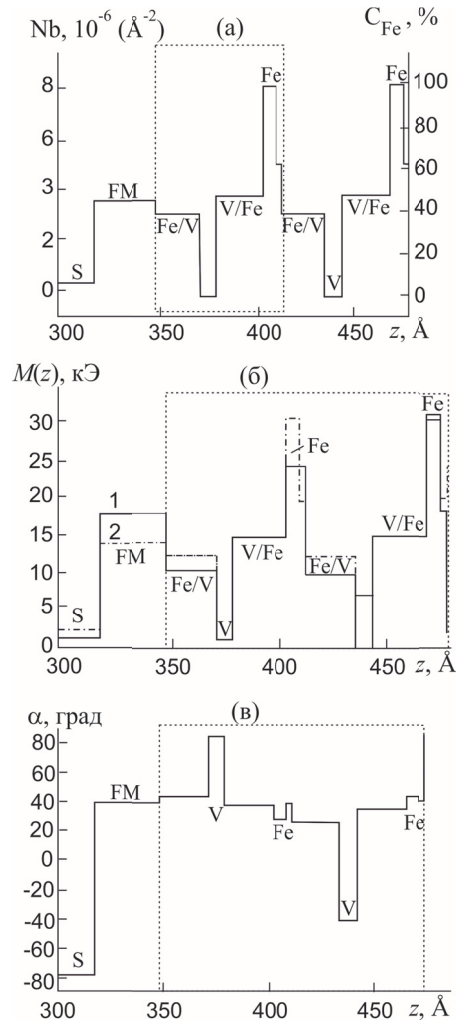
### § 15.1. Общие замечания

В этой главе мы рассмотрим самый молодой метод исследования вещества с помощью рассеяния нейтронов – *нейтронную рефлектометрию*, которая состоит в изучении рассеяния неполяризованных и поляризованных нейтронов от внешних или внутренних границ раздела сред при скользющем падении. Базовым процессом при этом является полное отражение от поверхности, открытое Э.Ферми еще в 1944 г. Уже тогда начались исследования нейтронно-оптических явлений – отражения, преломления и интерференции нейтронных волн (см. Введение и § 3.1). Показатель преломления нейтронных волн для большинства материалов меньше единицы, а отклонение бывает порядка  $10^{-5}$ . Поэтому полное отражение происходит при углах падения из вакуума (или воздуха), равных нескольким угловым минутам, по крайней мере, меньше градуса. Это означает, что на образец попадает мало нейтронов и изучение процессов рассеяния затруднено. Поэтому из-за низкой интенсивности источников нейтронов развитие нейтронной рефлектометрии задержалось. Однако измерение показателя преломления принесло большую практическую пользу, поскольку критический угол полного отражения определяется длиной волны нейтрона, плотностью длины рассеяния и магнитными свойствами материалов. Сформировался раздел прикладной нейтронной оптики, направленный на измерение длин рассеяния, создание нейтронных волноводов и других нейтронно-оптических устройств, включая нейтронные поляризаторы.

Появление высокопоточных импульсных источников нейтронов в 1980-х годах привело к пониманию того, что изучение интенсивности «частично» отраженных нейтронов за областью полного отражения может дать детальную информацию о структуре поверхности и межфазных границ, а именно появилась возможность прямого измерения профиля ядерного и магнитного взаимодействия нейтронов с веществом в глубине образца относительно поверхности.

На рис. 15.1.1 показан пример данных, полученных при исследовании магнитной слоистой структуры с помощью зеркального отражения поляризованных нейтронов. Приведены ядерный (а) и магнитный (б, в) пространственные профили структуры  $\text{Pd}(2\text{нм})/[\text{V}(33\text{нм})/\text{Fe}(3.6\text{нм})]/20[\text{V}(3.2\text{нм})/\text{Fe}(3.2\text{нм})]/\text{MgO}$  при  $T = 1.7\text{ К}$  и  $H = 1\text{ кЭ}$ . На рисунке отмечены (слева направо) сверхпроводящий слой ванадия (обозначен буквой S) и примыкающий к нему ферромагнитный слой железа (FM), затем - слои периодической структуры: Fe/V – переходный подслой между слоем ванадия и нанесённым на него слоем железа, V – слой ванадия, V/Fe – переходный подслой между слоем железа и нанесённым на него слоем ванадия, Fe – слой железа. Видно, что существует ядерный период,

равный сумме толщин слоев железа и ванадия, и магнитный период, равный удвоенному ядерному периоду.



**Рис. 15.1.1.** Экспериментальные данные для обозначенной в тексте структуры. а) – пространственная зависимость ядерного профиля структуры Nb и концентрации атомов железа  $C_{\text{Fe}}$ ; б) – пространственная зависимость полной намагниченности  $M$  (сплошная линия, 1) и намагниченности железа (штрихпунктирная линия, 2); в) – пространственная зависимость угла  $\alpha$  между векторами напряжённости магнитного поля и намагниченности среды. Пунктирной линией отмечен магнитный период в структуре [Aksenov et al., 2003].

Из приведенных данных следует, что при температуре 1.7 К, что ниже температуры сверхпроводящего перехода в ванадии, слой немагнитных атомов ванадия в контакте с слоем железа становится намагниченным. С другой стороны,

намагниченность слоя железа меняется – она может стать больше или меньше намагниченности толстого образца.

Круг задач, решаемых на нейтронных рефлектометрах, постоянно расширяется. Во многом это связано с расширением возможностей самого метода. Если на первых рефлектометрах проводилось измерение коэффициента отражения только при зеркальном отражении, то в последнее время все большее распространение получает анализ рассеянного пучка в вертикальной и горизонтальной плоскостях. Этот метод, получивший название трехмерной (3D) рефлектометрии, позволяет дополнительно к зеркальному отражению регистрировать диффузное и малоугловое рассеяние от изучаемого объекта.

Основы нейтронной рефлектометрии были изложены в первой части книги (§§ 3.2, 7.4, 7.5). Эта глава посвящена экспериментальным аспектам и возможностям с учетом современных тенденций.

В силу относительной новизны нейтронной рефлектометрии, как экспериментального метода, его описание не вошло в известные монографии по рассеянию нейтронов. Пока единственной монографией, полностью посвященной рефлектометрии поляризованных нейтронов и включающей теоретические и экспериментальные аспекты метода, является книга [Никитенко и Сыромятников, 2013]. Отметим также фундаментальные обзоры [Toperverg, 2015] (по рефлектометрии поляризованных нейтронов) и [Lauter et al., 2012] (по трехмерной рефлектометрии).

## § 15.2. Предмет исследования и постановка задачи

Большой интерес к нейтронной рефлектометрии связан, прежде всего, с недавними открытиями новых эффектов в физике наноматериалов, которые лежат в основе функционирования элементов современной вычислительной техники. Возможности неразрушающего метода нейтронной рефлектометрии позволяют получать данные о внутренней структуре новых наноматериалов, недоступные другим методам. Интерес к нейтронной рефлектометрии, чувствительной к состоянию поверхности, обусловлен все большим распространением материалов с развитой поверхностью, к которым относятся наноструктурированные многослойные магнитные и немагнитные гетероструктуры, коллоидные растворы, биологические системы. Благодаря уникальной возможности восстановления глубинных профилей намагниченности и послойной векторной магнитометрии рефлектометрия поляризованных нейтронов нередко играет решающую роль при исследовании магнетизма приповерхностных областей, тонких пленок, многослойных наноструктур и структурированных в слоях объектов, особенностей их перемангничивания, корреляции структурных и магнитных особенностей. Поэтому ее все чаще применяют при аттестации высокотехнологичных образцов и отработке технологий.

Изучению магнетизма в магнитных слоях и тонких пленках в последние

годы уделяется повышенное внимание. Наиболее яркие примеры, демонстрирующие важность изучения этих явлений, включают косвенное обменное взаимодействие ферромагнитных слоев через промежуточные (парамагнитные, полупроводниковые) слои, эффект обменного подмагничивания при контакте ферромагнитных и антиферромагнитных слоев, эффект обменной «пружинной» связи между магнитно-жесткими и мягкими слоями, спин-ориентационные фазовые переходы, эффекты близости ферромагнитных и сверхпроводящих слоев. Важнейшие из этих явлений изучались с помощью рефлектометрии поляризованных нейтронов, поскольку этот метод является прямым и чувствительным к морфологическим и магнитным особенностям слоистых наноструктур. Некоторые из перечисленных эффектов, например обменное подмагничивание и обменное взаимодействие через промежуточные слои, уже неплохо изучены для существующих технологических систем. Однако с их продолжающейся миниатюризацией эти эффекты будут проявляться на меньших масштабах с усилением роли границ и влияния на состояние электронной системы. Понимание роли новых механизмов взаимодействия приведет не только к пониманию фундаментальных законов наноманетизма, но и позволит использовать их для конструирования систем с заданными магнитными и транспортными свойствами, например для устройств магнитной памяти, инжекторов поляризованных электронов. Особое внимание в последние годы уделяется проблемам спинтроники и создания квантового компьютера, с которыми связывают очередную промышленную революцию. Наличие спина у электронов уже используется для считывания информации с жестких дисков в коммерческих устройствах, основанных на эффекте гигантского магнетосопротивления. В дальнейшем с развитием спинтроники может быть снято фундаментальное ограничение электроники, связанное с потерей энергии при перемещении заряда, поскольку *спиновый* ток возможен при нулевом токе заряда. Индуцированное спин-орбитальным взаимодействием, эффективное магнитное поле действует только на спины. Это обстоятельство может послужить решению задач спинтроники, в частности созданию спиновых транзисторов, в которых контролируется спиновый ток, для использования в процессорах, в устройствах постоянной памяти и даже для реализации кубитов – элементов для квантовых вычислений.

Нейтронная рефлектометрия часто является единственным экспериментальным методом, с помощью которого можно получать прямую и достаточно детальную информацию о состоянии границ жидкой фазы с газом, твердым телом или другой жидкостью, а также о состоянии слоистых структур на этих границах независимо от химического состава материалов. Важнейшим типом жидкостей являются коллоидные растворы, содержащие частицы с размерами  $10^2$ – $10^3$  атомов. Перспективным для различных приложений примером является феррожидкость – искусственный магнитный коллоид. Естественными коллоидными системами являются такие комплексные жидкости, как кровь.

Ключевым признаком комплексных жидкостей выступает самоорганизация молекул в надмолекулярные структуры типа мицелл. Искусственно получаемые мицеллы могут также служить модельными структурами для протоплазмы, построенной из полимерных молекул и являющейся важнейшей составляющей живых клеток.

С помощью нейтронной рефлектометрии детально изучают физические и химические процессы на границах фаз в биологических материалах и биологические процессы, связанные с взаимодействием и переносом вещества через биологические мембраны. Нейтронная рефлектометрия является методом, чувствительным к состоянию границ и пригодным для исследования даже нанограммовых количеств вещества. Как и в общем случае, в исследованиях методом нейтронной рефлектометрии большое значение имеют особенности взаимодействия нейтронов с веществом, которые определяют уникальность метода и его комплементарность к светосильному методу рентгеновской рефлектометрии. Например, замещение водорода на дейтерий используют, при изучении биоматериалов для повышения чувствительности к определенным компонентам на границах, более однозначного выбора модели изучаемой структуры. С использованием изотопного контрастирования и изотопного замещения можно получить уникальную информацию, измеряя сечения сопутствующего незеркального рассеяния, а также малоуглового рассеяния при скользящем падении. Чувствительность нейтронов к легким элементам, изотопное замещение и контрастирование, чувствительность к малому количеству исследуемого вещества (в виде тонкого слоя) и неразрушающий характер являются хорошей основой для использования метода нейтронной рефлектометрии при исследовании свойств биологических мембран. Для моделирования мембран и структурной характеристики мембранных белков, идентификации их взаимодействия, связей и расположения обычно используют липидный бислой. Стандартные методы (кристаллография белков, ЯМР) оказываются здесь неприменимыми или неэффективными из-за малого количества изучаемого материала.

Другой обширной областью для нейтронных исследований являются развивающиеся в последнее время методы воздействия на поверхность материалов. Например, самоорганизующиеся монослои органических молекул позволяют изменять характеристики поверхностей (границ раздела): смачивание, адгезию, химическую устойчивость, биосовместимость. Поэтому они находят все более широкое применение в электронике, электрохимии и биологии и могут служить для защиты металлов от воздействия химически активных сред при травлении для изменения поверхностных свойств электродов в различных микро- и нанoeлектромеханических системах для контролирования передачи электронов через контакты. Самоорганизующиеся монослои могут наноситься на наноструктуры и обеспечивать их функциональность, например химическую или биологическую избирательность (химические датчики, биосенсоры, нанороботы).



В более общем смысле речь может идти об исследованиях гибридных материалов, в которых приводятся в контакт материалы различного класса и наблюдаются новые явления на их границах. Одна из главных задач науки о жизни состоит в комбинировании биологических и технологических аспектов таких явлений в широком спектре их приложений. Отсюда интерес к границам между биологическими материалами и металлами, полупроводниками, которые могут играть роль от биосенсоров до биоимплантов (имплантов) организма.

Нанощероховатости в окрестности границ раздела, магнитные и ядерные неоднородности в отдельных слоях оказывают влияние на те или иные взаимодействия и свойства структур. Поэтому важным является регистрация диффузного рассеяния нейтронов от структуры. В этой связи следует отметить, что метод нейтронной рефлектометрии в своей технической реализации хорошо совместим с методом диффузного рассеяния нейтронов на неоднородностях среды. Действительно, экспериментальная основа метода нейтронной рефлектометрии – необходимость проведения измерений отражения нейтронов в окрестности критического значения переданного волнового вектора  $q_c = 4\pi \sin \alpha_c / \lambda$ , где  $\lambda$  – длина волны нейтрона,  $\alpha_c$  – критический угол скольжения нейтронов. Значение  $q_c$  зависит от плотности ядер и величины амплитуды рассеяния нейтронов на ядре и составляет порядка  $2 \cdot 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$ , что для тепловых нейтронов с длиной волны  $\lambda = 1.8 \text{ \AA}$  соответствует углу рассеяния  $\theta_{\text{расс.,r}} = 2\alpha_c \approx 6 \cdot 10^{-3}$  рад. Экспериментальной же основой метода диффузного рассеяния нейтронов является необходимость проведения измерений в окрестности значения вектора рассеяния  $q = 4\pi \sin(\theta_{\text{расс.,d}} / 2) / \lambda = 2\pi / d$ , где  $d$  – линейный размер неоднородности среды (корреляционная длина). Из соотношения для  $q$  следует, что при  $d \approx 300 \text{ \AA}$  угол рассеяния составляет  $\theta_{\text{расс.,d}} \approx 5.9 \cdot 10^{-3}$ , это очень близко к критическому углу рассеяния  $\theta_{\text{расс.,r}}$  в методе рефлектометрии.

Таким образом, соответствие угловых характеристик двух типов рассеяния нейтронов, необходимость знать структуру и ее искажения на границах раздела, а также степень однородности вещества в слоях структуры, приводит нас к постановке задачи: современная рефлектометрия должна содержать как регистрацию зеркального и диффузного отражения от границ раздела и поверхностей, так и регистрацию малоуглового рассеяния нейтронов на неоднородностях в тонкой пленке или слоях в многослойной структуре.

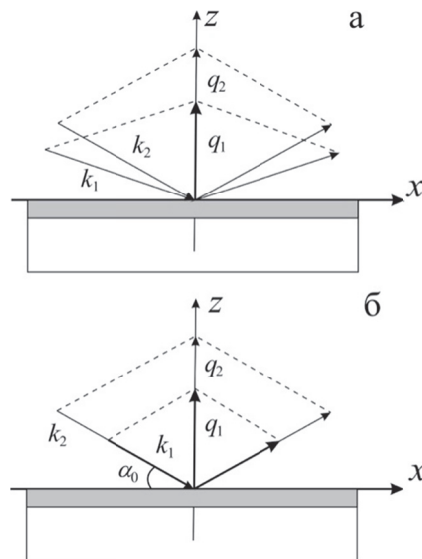
## § 15.3. Рефлектометрический эксперимент

### 15.3.1. Нейтронные рефлектометры

Нейтронная рефлектометрия становится с каждым годом все популярнее. В настоящее время практически на каждом источнике нейтронов в мире имеется, по

крайней мере, один рефлектометр, на котором проводятся структурные исследования тонких пленок и многослойных наноструктур. В XXI столетии число рефлектометров удвоилось, в наши дни их около 80, полный перечень и описание большинства из них можно найти в постоянно обновляемом обзоре [Rennie, 2020]. В России на время написания книги имелось три работающих рефлектометра, все они расположены на реакторе ИБР-2 в Объединенном институте ядерных исследований (Дубна, Московской области). Описание российских рефлектометров (действовавших, действующих, создаваемых и проектируемых) можно найти в недавнем обзоре [Боднарчук и др., 2021]. Отсылая читателя за деталями к этим обзорам, мы ограничимся общим описанием и принципиальными моментами (см. также [Никитенко и Сыромятников, 2013]).

В простейшем рефлектометрическом эксперименте (рис. 15.3.1) регистрируется интенсивность зеркально отраженных нейтронов в зависимости от компоненты вектора рассеяния  $q_z$ , перпендикулярной плоскости образца. Если структура однородна в плоскости образца, то  $q_x = q_y = 0$ . Существует два способа сканирования по  $q_z$ : при фиксированной длине волны нейтронов (рис. 15.3.1а) и по времени пролета нейтронов (рис. 15.3.1б).



**Рис. 15.3.1.** Геометрия рефлектометрического эксперимента: а) с фиксированной длиной волны; б) по времени пролета. (См. пояснения в тексте).

При фиксированной длине волны нейтронов  $\lambda_0 = \text{const}$  одновременно изменяется угол скольжения падающего и зеркально отраженного пучка  $\alpha_1 = \alpha_0$ , тогда  $q_z \approx \frac{4\pi}{\lambda_0} \alpha_0$ . На рисунке для наглядности изменение угла показано

изменением направления пучка нейтронов. В реальности угол меняют поворотом образца. Коэффициент отражения равен отношению интенсивности зеркально отраженного пучка  $I(q_z)$  к интенсивности падающего на образец пучка  $I_0(q_z)$ :  $R(q_z) = I(q_z)/I_0(q_z)$ . Интенсивность падающего на образец пучка зависит от ширины пучка, которая пропорциональна длине образца и углу скольжения  $\alpha_0$ . Тогда коэффициент отражения с фиксированной длиной волны измеряется как функция угла скольжения падающего пучка:  $R(\alpha_0) \sim I(\alpha_0)/\alpha_0$  (пример на рис. 3.2.7).

В рефлектометрии по методу времени пролета угол скольжения падающего пучка фиксирован  $\alpha_0 = \text{const}$ , а изменяется длина волны:  $\lambda \sim q_z^{-1}$ . Коэффициент отражения равен  $R(\lambda) = I(\lambda)/I_0(\lambda)$ , где  $I_0(\lambda)$  – спектр падающего на образец пучка нейтронов (см. рис. 3.2.3, 3.2.4, 3.2.6).

На начальном этапе развития нейтронной рефлектометрии на большинстве рефлектометров, создаваемых на стационарных источниках, использовались монохроматический пучок нейтронов и вертикальное расположение отражающей поверхности образца. При этом измерение кривой отражения проводилась путем согласованных поворотов образца и детектора ( $\alpha_0 - 2\alpha_0$  метод). Эта конфигурация обеспечивала стабильно высокую светосилу во всем интервале векторов рассеяния, хотя приходилось вводить поправку на изменение площади отражения при поворотах образца. Сканирование в пределах заданного интервала  $q_z$  проводилось в последовательном режиме, что приводило к относительно большому времени измерений.

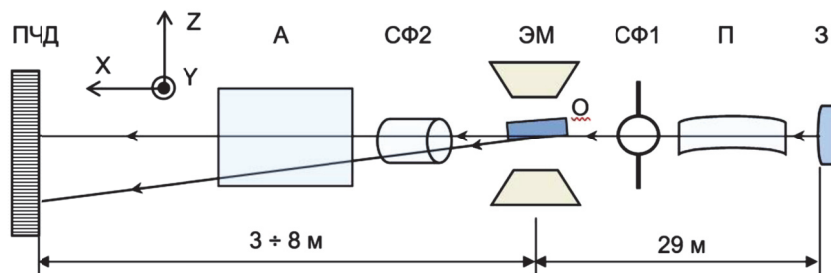
Появившиеся в середине 1980-х годов рефлектометры на импульсных источниках нейтронов продемонстрировали серьезные достоинства использования широкого спектра нейтронов и метода времени пролета для регистрации коэффициента отражения. Основными из них являются фиксированная геометрия, одновременность измерения сразу всей кривой отражения и возможность анализа жидких сред. В результате комбинация «белый» спектр – вертикальная плоскость отражения стала активно применяться и на стационарных источниках нейтронов. Для создания импульсов нейтронов использовались быстрые прерыватели, причем в этом случае появлялась дополнительная опция выбора оптимальной частоты импульсов (в отличие от фиксированной частоты импульсов от источника). В тоже время метод постоянной длины волны имеет свои преимущества, когда область переданных волновых векторов ограничена, например, в пределе брэгговских пиков при отражении от периодической структуры. В этом случае можно увеличить статистическую точность.

Если образец представляет собой магнитное вещество, то полную информацию о профиле как ядерных, так и магнитных сил можно получить с помощью поляризованных нейтронов (§ 7.4). Конечно же, создание и проводка

поляризованного пучка нейтронов и анализ разнообразных эффектов его отражения и рассеяния значительно усложняет конструкцию рефлектометра, но поскольку анализ именно магнитных структур – привилегия нейтронов, то большая часть рефлектометров в развитых нейтронных центрах имеют эту опцию.

Большинство работающих в наше время рефлектометров имеют конфигурацию с вертикальным расположением образца, когда плоскость отражения расположена горизонтально, что легко реализуется для образцов с твердой поверхностью. Для образцов со свободной поверхностью – жидкостей или систем с жидкими межфазными границами, образец должен быть расположен горизонтально. В этом случае плоскость отражения будет вертикальной. Конструкция рефлектометров с горизонтальной геометрией образца сложнее вертикальной геометрии, поскольку пучок нейтронов должен быть направлен на образец сверху вниз. При горизонтальной геометрии образца метод времени пролета имеет дополнительное важное преимущество геометрии рассеяния при фиксированном угле рассеяния, поскольку не надо вращать образец, что существенно для образцов со свободной поверхностью.

Рассмотрим принципиальную схему *нейтронного рефлектометра с вертикальным расположением образца*, содержащую все минимально необходимые элементы рефлектометра поляризованных нейтронов. В качестве примера возьмем упрощенную конфигурацию одного из лучших в мире времяпролетных рефлектометров РЕМУР [Аксенов и др., 2004], расположенного на реакторе ИБР-2М в Дубне (рис. 15.3.2). РЕМУР означает РЕфлектометрия и МалоУгловое Рассеяние, поскольку в этом спектрометре предполагаются обе функции.



**Рис. 15.3.2.** Схема рефлектометра поляризованных нейтронов СПН-2 (вид сверху): 3 - замедлитель реактора; П – поляризатор; СФ1 – первый спин-флиппер; ЭМ – электромагнит; О – образец; СФ2 – второй спин-флиппер; А – многощелевой анализатор на суперзеркала; ПЧД – позиционно-чувствительный детектор. Плоскость образца расположена вертикально, рассеяние происходит в горизонтальной плоскости.

Рефлектометр включает в себя следующие основные элементы: поляризатор (П), спин-флиппер перед образцом (СФ1), спин-флиппер после

образца (СФ2), анализатор поляризации (А) и позиционно-чувствительный детектор (ПЧД). Между замедлителем реактора (З) и поляризатором располагаются не показанные на рисунке двухдисковый прерыватель и конический фокусирующий нейтронный провод длиной 10 м. Прерыватель служит для подавления фона между импульсами реактора, а конический нейтронный провод увеличивает угол расходимости в горизонтальной плоскости для входящего пучка и тем самым повышает интенсивность пучка на выходе нейтронного провода перед входом поляризатора.

Поляризатор формирует из неполяризованного пучка нейтронов на входе частично поляризованный пучок на выходе. Далее для сохранения степени поляризации пучка вдоль всей траектории пучка до анализатора создаётся ведущее магнитное поле напряжённостью от 10 до 100 Э. При включении первого спин-флиппера направление поляризации пучка перед образцом изменяется на противоположное. При выключенном первом спин-флиппере направление поляризации пучка не меняется. Далее поляризованный пучок нейтронов взаимодействует с образцом, например, зеркально отражается от магнитно-неколлинеарной плёнки. После образца располагается второй спин-флиппер, который при включении тоже меняет направление поляризации пучка на противоположное. Анализатор поляризации служит для анализа степени поляризации пучка нейтронов, которая может измениться в результате взаимодействия поляризованного пучка нейтронов с магнитным образцом. Таким образом, в схеме с полным поляризационным анализом измеряется четыре интенсивности нейтронов при выключенном «off» и включенном «on» состояниях двух спин-флипперов:  $I^{\text{off, off}}$ ,  $I^{\text{on, off}}$ ,  $I^{\text{off, on}}$  и  $I^{\text{on, on}}$ . Здесь левый индекс соответствует состоянию первого спин-флиппера, а правый – второго.

Шероховатость границ раздела или наличие магнитных неоднородностей в поляризирующих зеркалах приводит к тому, что нейтронный пучок поляризуется не полностью. Качество их работы характеризуется поляризующей эффективностью поляризатора  $P_p$  и анализатора  $P_a$ . В идеальном случае должно быть  $P_p = P_a = 1$ , но на практике поляризующая эффективность равна от 0.8 до 0.99 в зависимости от длины волны нейтронов.

Так как углы скольжения малы, то магнитные зеркала формируют и анализируют поляризованные пучки нейтронов в виде узкой полосы шириной порядка 1 мм (щелевая геометрия). Чтобы иметь возможность анализа поляризации рассеянных пучков нейтронов в широком диапазоне углов, используют многощелевые (или соллеровского типа) анализаторы на суперзеркалах. Для этого намагниченные зеркала на тонкой подложке толщиной около 0.5 мм собирают в стопку из примерно 100 штук с расстоянием между зеркалами около 1 мм. Тогда можно получить размеры рабочей области для анализа рассеянного пучка порядка  $100 \times 100 \text{ мм}^2$ .

Эффективность работы спин-флиппера определяется вероятностью переворота спина нейтронов, которая зависит от конструкции спин-флиппера,

конфигурации магнитных полей, ширины пучка, длины волны нейтронов и т.д. Обозначим через  $f_1$  и  $f_2$  вероятности переворота спина нейтронов первым и вторым спин-флиппером соответственно. Максимальное значение в идеальном случае  $f_1 = f_2 = 1$ . При выключенных спин-флипперах полагаем  $f_1 = f_2 = 0$ .

Чтобы из четырёх интенсивностей нейтронов  $I^{\text{off, off}}$ ,  $I^{\text{on, off}}$ ,  $I^{\text{off, on}}$  и  $I^{\text{on, on}}$  извлечь четыре коэффициента отражения от магнитной плёнки  $R^{++}$ ,  $R^{--}$ ,  $R^{+-}$  и  $R^{-+}$ , необходимо проводить калибровку рефлектометра поляризованных нейтронов для определения параметров  $f_1$ ,  $f_2$ ,  $P_p$  и  $P_a$ . Здесь «+» или «-» обозначают знак проекции спина нейтронов на направление ведущего магнитного поля (по полю или против). Описание процедуры калибровки можно найти в работе [Аксенов и др., 2004].

Первый вариант рефлектометра РЕМУР (имел название Спектрометр Поляризованных Нейтронов-1, СПН-1) начал работать в 1985 г. в числе первых в мире рефлектометров поляризованных нейтронов. С тех пор был проведен ряд модернизаций. На рис. 15.3.2 показан второй вариант, СПН-2. В современном виде имеется два поляризатора вместо одного и довольно сложная система формирования пучка, состоящая из четырех коллиматоров до поляризаторов и одного после. Если смотреть на рис. 15.3.2, то эта система расположена до первого спин-флиппера  $F_1$ . До и после первого спин-флиппера установлены две управляемые диафрагмы.

Существенным элементом установки является оригинальный многоцелевой веерный анализатор поляризации. В рефлектометрическом эксперименте важным является взаимное расположение исследуемого образца и зеркал анализатора. Ранее для анализа поляризации незеркально отраженного пучка нейтронов использовался многоцелевой анализатор со стопкой параллельных друг другу зеркал, расположенных горизонтально (перпендикулярно вертикальной плоскости образца). В такой геометрии сохраняется одинаковая поляризующая эффективность анализатора для всех углов незеркального отражения, но резко снижается интенсивность прошедших нейтронов из-за сильной вертикальной коллимации пучка анализатором. В анализаторе поляризации спектрометра РЕМУР плоскости его зеркал и плоскость образца параллельны. При этом каждое зеркало анализатора ориентировано так, что образует один и тот же определенный угол с прямой линией, проведенной из одной точки – фокуса анализатора. Стопка зеркал по форме напоминает веер, и поэтому сфокусированный анализатор называется также веерным. В фокусе анализатора помещается исследуемый образец. Фокусное расстояние анализатора равно 4400 мм, расстояние между зеркалами толщиной 0.3 мм составляет 0.93 мм на входе и 1 мм на выходе, а угол скольжения пучка нейтронов на зеркале (угол наклона плоскости зеркала к радиусу-вектору, проведенному из фокуса) равен 4.5 мрад. Среднеквадратичная неопределенность угла скольжения пучка нейтронов на отдельном зеркале анализатора составляет 0.09 мрад, что в 2 раза меньше такой же величины для детектора и практически не приводит к

ухудшению углового разрешения детектирования нейтронов. При этом относительное среднеквадратичное отклонение угла скольжения на зеркале составляет 2%, а среднеквадратичный по зеркалам разброс поляризационной эффективности не превышает 0,5%. Очевидно, чтобы обеспечить такие же параметры поляризационной эффективности и с образцом, ширина нейтронного пучка на образце (эффективная толщина образца) не должна превышать половины шага дискретности анализатора  $\Delta d/2 = 0,65$  мм. При этом протяженность образца в направлении пучка должна быть не более 90 мм, а точность установки образца в направлении поперек пучка не хуже 0.2 мм. Эти требования, как правило, выполняются при работе в рефлектометрической моде измерений. Важным преимуществом этого типа анализатора поляризации является его высокая светосила. Обусловлено это тем, что при вертикальной ориентации зеркал анализатора и образца, как это есть в веерном анализаторе, анализатор и образец оказываются согласованными по расходимостям как в горизонтальной, так и в вертикальной плоскостях.

В рефлектометре РЕМУР реализованы следующие возможности.

1. Поляризационный анализ рассеянного пучка в широком диапазоне углов.
2. Полная автоматизация управления элементами установки: движение диафрагм, настройка образца, настройка поляризатора и анализатора.
3. Автоматизация эксперимента и выбор режима измерений: с анализатором или без него, два спин-флиппера, один спин-флиппер и т.д.
4. Автоматический контроль работы рефлектометра: состояние спин-флипперов, величина магнитного поля, температура образца, охлаждение катушек электромагнита, сброс мощности реактора и т.д.
5. Оперативная визуализация данных.

Рассмотрим *рефлектометр с горизонтальным расположением образца*.

В качестве примера возьмем рефлектометр ГРЭЙНС (в английском прочтении GRAINS – аббревиатура от GRAZing Incidence Neutron Scattering) [Авдеев и др., 2017].

Рефлектометр ГРЭЙНС, принципиальная схема которого представлена на рис. 15.3.3, расположен на реакторе ИБР-2, канал №10. Импульсный характер работы источника нейтронов ИБР-2 с частотой повторения импульсов 5 Гц предопределяет естественный режим работы установки на основе метода времени пролета. Основные элементы рефлектометра: замедлитель, головная часть, прерыватель, система формирования пучка, столик образца и детекторная система. Пучок формируется с помощью набора коллимирующих устройств и отклоняющего зеркала – принципиального элемента, который отделяет пучок тепловых нейтронов от быстрых фоновых нейтронов и направляет его на горизонтально расположенную границу раздела под определенным углом. Далее отраженный или рассеянный пучок попадает в детекторную систему, которая одновременно определяет и угол рассеяния, и время пролета нейтронов. Основное

сканирование компонент вектора рассеяния проводится по времени пролета нейтронов, которое пересчитывается в длину волны.

Ось канала направлена на замедлитель, который может функционировать в двух режимах: холодном и тепловом. В холодном режиме камера замедлителя заполняется смесью ароматических углеводородов мезитилена и т-ксилола в виде гранул размером около 4 мм при рабочей температуре 30 К. В тепловом режиме камера остается пустой, и источником нейтронов является водяной предзамедлитель, расположенный у активной зоны реактора, с рабочей температурой 290 К. Два режима работы замедлителя существенно отличаются друг от друга в отношении спектральных характеристик нейтронного пучка. В холодном режиме замедлитель формирует спектр с существенно большей долей нейтронов в длинноволновой области по сравнению с тепловым режимом, хотя интегральный поток нейтронов становится несколько меньше. Режим работы с холодным источником нейтронов позволяет проводить измерения в большем динамическом диапазоне переданных импульсов и является предпочтительным.

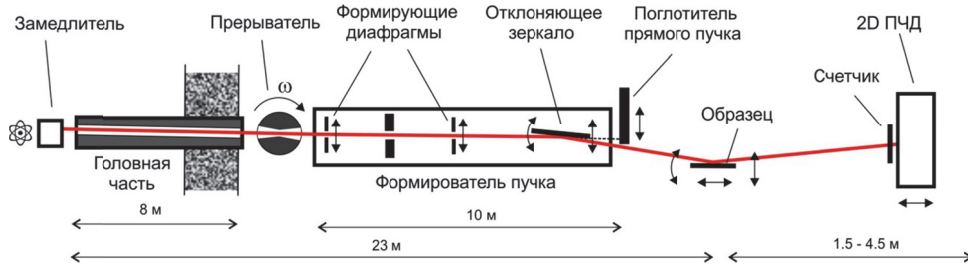
Головная часть рефлектометра, заключенная в вакуумный стальной кожух (вакуум  $10^{-2}$  торр) с алюминиевыми (толщина 0.5 мм) «окнами» для ввода и вывода пучка, содержит коллиматоры, формирующие пучок нейтронов вдоль оси, лежащей в вертикальной плоскости под углом  $3 \cdot 10^{-3}$  рад к горизонту. За головной частью располагается вращающийся фоновый прерыватель барабанного типа, задачей которого является пропускание теплового участка спектра, сгенерированного отдельной вспышкой реактора, с последующим перекрытием канала пучка после прохождения требуемого спектрального интервала для уменьшения фона быстрых нейтронов. Далее в системе формирования пучка, также заключенной в вакуумный кожух, с помощью нескольких управляемых диафрагм задается требуемый размер пучка (исходя из доступной для облучения поверхности образца и фоновых условий). Угол скольжения по отношению к поверхности образца регулируется посредством плоского отклоняющего зеркала нейтронов с отражающим покрытием на его обеих сторонах. Последняя особенность позволяет организовать различные способы падения пучка на границы раздела: «сверху» (используется нижняя сторона зеркала) и «снизу» (используется верхняя сторона зеркала). Отклоняющее зеркало также отделяет тепловые нейтроны (отражаются под некоторым углом) от быстрых нейтронов, которые проходят без отклонения и попадают в специальную ловушку, расположенную за зеркалом, что существенно улучшает фоновые условия на образце.

Исследуемые образцы закрепляют в специальные держатели в горизонтальной плоскости на гониометрическом столе, который установлен на антивибрационной платформе для предотвращения передачи низкочастотных колебаний пола образцу (что является актуальным при проведении измерений с жидкостями). Юстировка образца проводится по трем координатным осям, а также по горизонтальным поворотным осям вдоль и перпендикулярно оси пучка.



Держатель образца обеспечивается термостатированием в температурном интервале от  $-15$  до  $180^{\circ}\text{C}$ .

Рассеянный пучок регистрирует детекторная система, состоящая из основного газового двумерного позиционно-чувствительного детектора (2D ПЧД) большой площади и дополнительного стандартного газового счетчика. ПЧД представляет собой многопроволочную пропорциональную камеру на линиях задержки с универсальной системой сбора и хранения данных. Детекторы установлены на подвижной платформе, их располагают за образцом на заданном расстоянии (рис. 15.3.3); плоскость ПЧД и ось счетчика всегда перпендикулярны оси пучка. Проведение эксперимента полностью автоматизировано, управление осуществляется, в том числе, и с удаленным доступом.



**Рис. 15.3.3.** Принципиальная схема нейтронного времяпролетного рефлектометра ГРЭЙНС с горизонтальным расположением образца (вид сбоку) [Авдеев и др., 2017].

### § 15.3.2. Проведение эксперимента

Прежде всего, в любом эксперименте, при фиксированной длине волны и по времени пролета, необходимо как можно более точно выставить образец по отношению к пучку нейтронов, чтобы определить оптимальный угол зеркального падения на поверхность. Для этого на рефлектометрах имеется лазерная система. Если ее нет, то при фиксированном положении детектора при заданном угле относительно падающего пучка  $2\alpha_0$  сканируют интенсивность отражения при повороте образца на малые углы относительно угла  $\alpha_0$  в поисках максимального значения интенсивности (угловое сканирование). Затем выполняют  $z$ -сканирование: при найденном оптимальном для зеркального отражения положении образца ( $\alpha_0$ ) и детектора ( $2\alpha_0$ ) определяют максимальную интенсивность отражения при перемещении образца по  $z$ -оси. После  $z$ -сканирования еще раз, но с меньшим шагом, сканируют по углу для прецизионного установления условий зеркального отражения. Отметим, что в случае горизонтального расположения образца со свободной поверхностью описанная процедура не требуется, поскольку свободная поверхность сама всегда горизонтальна.

В эксперименте измеряется зависимость интенсивности отражения нейтронов от угла падения с помощью согласованных поворотов образца и детектора (метод  $\alpha_0 - 2\alpha_0$ ) или от длины волны в методе времени пролета. С использованием полученных интенсивностей вычисляют коэффициенты отражения. Коллиматоры регулируются так, чтобы в ходе эксперимента сохранялась освещаемая пучком поверхность образца и так, чтобы сохранялось угловое расхождение  $\Delta\alpha$  при изменении угла падения  $\alpha_0$ . Из измеренных интенсивностей надо вычесть фон, для определения которого смещают образец или детектор из положений зеркального рассеяния.

Точность определения  $q_z$  в рефлектометрическом эксперименте, как и в дифракционном (§ 13.4), определяется двумя величинами – отклонением длины волны нейтронов  $\Delta\lambda$  от заданной монохроматором и угловым расхождением пучка  $\Delta\alpha$  после коллиматоров и определяется формулой типа (13.4.2):

$$\left(\frac{\Delta q_z}{q_z}\right)^2 = \left(\frac{\Delta\lambda}{\lambda_0}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\alpha}{\alpha_0}\right)^2. \quad (15.3.1)$$

$\Delta\alpha$  определяется геометрическими неопределенностями процесса упругого рассеяния – угловыми размерами детектирующего элемента, размерами образца, но, главным образом, шириной диафрагмы перед образцом и расстоянием от нее до образца. Степень монохроматизации первичного пучка  $\Delta\lambda/\lambda$ , которая определяется монохроматором, фиксирована и обычно составляет несколько процентов. Общей практикой является выбор  $\Delta q/q$  на уровне нескольких процентов и создание условий, при которых  $\Delta\lambda/\lambda \approx \Delta\alpha/\alpha$ . Это может быть реализовано при работе с монохроматическим пучком, для которого  $\Delta\lambda/\lambda = \text{const}$ .

В эксперименте по времени пролета неопределенность определения угла отражения, как и в предыдущем случае, является постоянной величиной во всей области длин волн и она задается в зависимости от целей эксперимента и качества образца. Например, на рефлектометре РЕМУР обычный интервал значений  $\Delta\alpha/\alpha$  составляет 2–5 %. Разрешение по длине волны определяется шириной временных каналов детектора  $\Delta t_{\text{дет}}$  и длительностью импульса нейтронов после замедлителя  $\Delta t_{\text{ист}}$ . Чтобы связать эти величины с  $\Delta\lambda$ , напомним, что длина волны обратно пропорциональна импульсу и определяется соотношением де Бройля:  $\lambda = \hbar/mv$ ,  $\hbar$  – постоянная Планка,  $m$  и  $v$  – масса и скорость нейтрона, соответственно. Скорость нейтрона можно определить, зная расстояние от источника до детектора  $L$  время пролета нейтрона  $t$ . Получаем простую формулу для длины волны:

$$\lambda[\text{нм}] = 39.56 \cdot 10^{-5} t[\text{мкс}] / L[\text{м}] \quad (15.3.2)$$

Временные каналы детектора преобразуются в длину волны по формуле:

$$\lambda = \frac{(N - N_0) \Delta t_{\text{дет}} \cdot 39.56 \cdot 10^{-5}}{L}, \quad (15.3.3)$$

где  $N$  – номер временного канала регистрации нейтронов и  $N_0$  – номер временного канала вспышки источника. Временная часть функции разрешения имеет вид:

$$(\Delta t/t)^2 = [(\Delta t_{\text{ист}})^2 + (\Delta t_{\text{дет}})^2] / t^2. \quad (15.3.4)$$

Теперь, используя (15.3.4) в (15.3.2) можем вычислить абсолютное и относительное разрешение по длине волны. Для примера вычислим  $\Delta\lambda$  в случае рефлектометра РЕМУР с параметрами:  $\Delta t_{\text{ист}} = 320$  мкс,  $\Delta t_{\text{дет}} = 128$  мкс,  $L = 34$  м. Получаем  $\Delta\lambda = 0.004$  нм. Относительное разрешение  $\Delta\lambda/\lambda_0$  улучшается с ростом длины волны падающих нейтронов. Данная оценка показывает, что временная часть функции разрешения имеет тот же порядок величины, что и угловая часть в большой области рабочих длин волн и должна учитываться при анализе экспериментальных данных.

Помимо разрешения и полного потока нейтронов на образце, к основным характеристикам рефлектометров относятся диапазон векторов рассеяния и минимальный уровень коэффициента отражения, до которого возможно его уверенное измерение. Из формулы  $q_z = 4\pi\alpha/\lambda$  следует, что минимальная доступная компонента  $q_z$  определяется минимальным возможным углом отражения и максимальной длиной волны. Наоборот, максимальная доступная компонента  $q_z$  определяется максимальным возможным углом отражения и минимальной длиной волны. Типичный интервал длин волн на времяпролетных рефлектометрах составляет  $(1 - 10) \text{ \AA}$ , а интервал углов отражения –  $(0.002 - 0.1)$  радиана, и для  $q_z$  получаем интервал  $q_z \approx (0.002 - 1) \text{ \AA}^{-1}$ . Действительно, с точностью до 2, у большинства действующих рефлектометров, причем независимо от варианта сканирования обозначен именно такой доступный диапазон векторов рассеяния. Измеримость малых значений коэффициента отражения  $R$ , в основном определяется уровнем фона, который, как правило, относительно высок на импульсных источниках. Вследствие этого на стационарных реакторах удается измерять величины  $R \sim 10^{-7}$ , тогда как на импульсных источниках нижней границей является  $R \sim 10^{-6}$ .

При планировании экспериментов важно соблюдать соотношение между плотностью потока на образце и разрешающей способностью рефлектометра. Высокое разрешение позволяет детальнее изучить структуру, но улучшение разрешения приводит к уменьшению потока на образце, ограничивает область измерения переданных волновых векторов, ухудшает статистику и увеличивает время измерений. Чем выше разрешение, тем большей толщины пленки доступны для измерений. Поэтому обычно на источниках с низким и средним потоком нейтронов устанавливают рефлектометры с низким и средним разрешением, а на высокопоточных источниках – рефлектометры с высоким разрешением. В зависимости от конкретной задачи приходится чем-то жертвовать.

Измерение зеркального отражения, как правило, не составляет особых трудностей ни в обычной рефлектометрии, ни в рефлектометрии поляризованных нейтронов. Гораздо сложнее дело обстоит с измерениями и интерпретацией

незеркального и малоуглового рассеяния (рис 3.2.8), когда  $\alpha_1$  не равен  $\alpha_0$  из-за шероховатостей поверхности или межфазных границ или наличия неоднородностей структуры в слоях. Это связано с тем, что незеркальное рассеяние нейтронов, в отличие от рентгеновских лучей, намного слабее зеркального.

На рефлектометрах с постоянной длиной волны незеркальное рассеяние измеряется с использованием сканирования качанием, смещением детектора или образца (см. выше). При сканировании качанием угол падения  $\alpha_0$  изменяется шагами при фиксированном положении детектора ( $2\alpha_0$ ). При сканировании детектором меняется угол детектора ( $2\alpha_0$ ) относительно положения зеркального рассеяния. Используют также позиционно-чувствительный детектор (ПЧД) при фиксированном угле образца. На рефлектометрах по времени пролета, когда возможно использовать широкий интервал длин волн, незеркальное рассеяние наблюдается вместе с зеркальным с помощью одномерного ПЧД.

Измерение малоуглового рассеяния нейтронов при скользящем падении (МУРН-СП) завешает процедуру *полной трехмерной рефлектометрии*. Компоненты вектора рассеяния по всем трем осям определяются формулами (3.2.25). Для измерения МУРН-СП, как в методе постоянной длины волны, так и в методе времени пролета, требуется предельно высокая степень коллимации пучка (очень узкие щели коллиматоров) как по  $y$ -, так и по  $z$ -направлению, а также двумерный ПЧД. При МУРН-СП мы имеем дело с *ползущими (эванесцентными) волнами*, когда при условии, что  $\alpha_0$  меньше критического угла полного отражения  $\alpha_c$ , нейтронная волна распространяется параллельно поверхности образца и затухает экспоненциально в образце, что отвечает подбарьерному туннелированию нейтрона в область действия оптического потенциала. Заметим, что этого эффекта нет в случае идеально гладкой бесконечной поверхности (см. § 3.2.1). Глубина проникновения нейтрона в образец определяется выражением [Тогакай, 2011]:

$$\Lambda = \frac{\lambda}{2\pi} \left[ \sqrt{(\alpha_0^2 - \alpha_c^2) + 4\beta^2} - (\alpha_0^2 - \alpha_c^2) \right]^{-1/2}, \quad (15.3.5)$$

где  $\beta$  описывает поглощение нейтронов в образце:

$$\beta = \frac{\lambda}{4\pi} (\sigma_{\text{нк}} + \sigma_{\text{п}}), \quad (15.3.6)$$

где  $\sigma_{\text{нк}}$  и  $\sigma_{\text{п}}$  – сечения некогерентного рассеяния и сечение поглощения, соответственно.

Площади поперечного сечения падающего  $S_0$  и зеркально отраженного  $S_r$  потоков равны другу и ниже критического угла полного внешнего отражения  $\alpha_c$  полный поток отраженных нейтронов в отсутствие поглощения равен падающему. Это справедливо для отражающей поверхности, которая полностью перекрывает падающий нейтронный поток, ограниченный в пространстве диафрагмой, расположенной вблизи образца. Такое перекрытие может происходить при

достаточно больших углах падения  $\alpha_0 > \alpha_b$  на поверхность конечных размеров. Однако при меньших углах падения часть потока минует столкновение с поверхностью и интегральный отраженный поток пропорционален геометрическому фактору «засветки»  $\sin \alpha_0 / \sin \alpha_b \leq 1$ , где  $\sin \alpha_b = S_0 / S_b$ , где  $S_b$  – освещаемая область поверхности (область пересечения на поверхности образца падающего и отраженного потоков).

Неопределенность в задании исходного волнового вектора связана с конечными размерами коллимационных диафрагм и конечным расстоянием между ними, что приводит к ограничению точности  $\Delta\alpha$  в определении угла падения  $\alpha_0$ . Зная неопределенность в плоскости зеркального отражения можно определить *длину когерентности*:  $l_x \approx \lambda / (\pi \Delta\alpha \sin \alpha_0)$ . Отсюда для типичных значений параметров  $\Delta\alpha \sim 0.2$  мрад,  $\lambda = 6 \text{ \AA}$  и  $\alpha_0 \sim 1$  мрад следует, что  $l_x$  может достигать длины порядка миллиметра. По определению [Мандель и Вольф, 1995], длина когерентности суть среднее значение расстояния в плоскости образца между двумя точками, в которых происходит когерентное рассеяние с сохранением фазовых соотношений, то есть акты рассеяния согласованы между собой во времени (по длине волны) и в пространстве (по углам отражения). Соответственно, имеется тесная связь между когерентностью и разрешающей способностью экспериментальной установки.

Когерентность имеет фундаментальное значение для определения области применимости излагаемых представлений. В частности, обсуждение интерференции падающих и отраженных волн имеет смысл лишь в пределах *объема когерентности*  $V_{\text{coh}} \sim S_{\text{coh}} l_z$ , где  $S_{\text{coh}} \sim l_x l_y$  – *площадь когерентности*,  $l_y$  – длина когерентности в направлении перпендикулярном плоскости зеркального отражения, а  $l_z$  – вдоль нормали к поверхности. Первая из этих величин  $l_y = 1 / \Delta k_y$  задается неопределенностью  $\Delta k_y \approx k_0 \Delta\varphi$  соответствующей проекции волнового вектора  $\vec{k}_0$  и, фактически, неопределенностью  $\Delta\varphi$  азимутального угла  $\varphi$ . Как правило, в реальных экспериментах по нейтронной рефлектометрии  $\Delta\varphi \geq \Delta\alpha$ , и  $l_y \approx \lambda / (2\pi \Delta\varphi) \ll l_x$ . Если предположить, что  $\Delta\varphi = 10$  мрад и  $\lambda = 6 \text{ \AA}$ , то  $l_y \approx 10$  нм, т.е. на 5 порядков меньше, чем  $l_x$ , а площадь когерентности  $S_{\text{coh}} \approx 10^{-7}$  см<sup>2</sup>, т.е. на 7 порядков меньше площади образца. Несколько упрощая, площадь пятна когерентности на поверхности можно ассоциировать с размером области делокализации на поверхности каждого индивидуального нейтрона, взаимодействующего с поверхностью. Внутри этого пятна отражение и преломление происходит по законам когерентной оптики. Однако в эксперименте анализируется результат такого взаимодействия не индивидуального нейтрона, а огромного их числа в падающем на поверхность пучке. На современных рефлектометрах плотность потока нейтронов может достигать величины  $10^5$

нейтронов на квадратный сантиметр в секунду. В результате за время порядка 1.5 минуты практически вся площадь поверхности образца оказывается перекрыта  $10^7$  статистически независимыми площадками когерентности, а интегральный отраженный или преломленный за это время поток равен сумме соответствующих потоков от каждой из площадок. В условиях полного перекрытия исходного пучка нейтронов поверхностью его интегральный поток должен быть равен суммарному потоку отраженных и преломленных нейтронов за вычетом полного потока, поглощенного в среде. Если эта среда однородна и отделена от вакуума идеально плоской поверхностью, то распределение потока по углам в отраженном пучке должно быть таким же, как и в падающем пучке, и определяться исключительно коллимационными условиями. Если же поверхность не идеальна на масштабах больших площади когерентности, то отраженный пучок может уширяться как целое, в то время как неоднородности на меньших масштабах должны приводить к суперпозиции зеркального отражения и незеркального рассеяния. Заметим также, что площадь когерентности определена, как результат сечения трехмерной области когерентности плоскостью отражающей поверхности. В направлении нормали к поверхности соответствующая длина когерентности определяется, как  $l_z \approx \lambda / (2\pi\Delta\alpha)$ . При тех же условиях, что и выше  $l_z \approx 500$  нм, так что при малых углах скольжения существует иерархия характерных длин:  $l_y \ll l_z \ll l_x$ , и когерентные явления в разных направлениях проявляются при зеркальном отражении на весьма различающихся масштабах и различным образом. В частности, именно размеры области когерентности в плоскости зеркального отражения  $x, z$  не позволяют наблюдать вклад в отраженный поток интерференции между падающей и отраженной волнами. Кроме того, именно масштаб длины когерентности  $l_z$  в направлении нормали к поверхности в значительной мере определяет глубину переходной приповерхностной области, в которой падающий нейтронный поток преобразуется в преломленный. Наконец, именно поведение оптического потенциала  $V(z)$  в области  $z \leq l_z$  также существенно влияет на характер зависимостей коэффициентов отражения  $R(q_z)$ .

При обработке данных экспериментов имеется несколько вариантов анализа, чтобы получить из измеренного профиля коэффициента отражения,  $|R|^2$ , распределение плотности длины рассеяния в направлении перпендикулярном поверхности образца,  $\rho(z)$ . В любом случае остается «фазовая проблема», поскольку, как и структурные факторы в дифракции (см. гл. 13), амплитуды отражения в общем случае являются комплексными величинами:  $R = \text{Re} R + i \text{Im} R$ , и для их полного описания необходимо знать амплитуду и фазу. Как и в любом эксперименте по рассеянию, основанном только на измерении интенсивности рассеяния (сечения рассеяния, см. далее формулу (15.4.2)), потеря фазы в амплитуде отражения может привести к неопределенностям в получении

оптического потенциала. Одной и той же рефлектометрической кривой может соответствовать несколько разных профилей плотности длины рассеяния. Таким образом, знание фазы позволит выбрать правильное решение. Но не только. Например, в работе [Majkrzak et al., 2011] было показано с помощью предложенного авторами метода внутренних опорных (референтных) слоев точного определения фазы, что знание фазы позволяет получить также информацию и об однородности образца в плоскости.

Этот метод состоит в создании внутри многослойной структуры референтного слоя содержащего элементы, рассеяние на которых отличается от рассеяния на окружении. Это могут быть атомы водорода или магнитный слой между немагнитными слоями. В последнем случае, например, измерение коэффициента отражения поляризованных нейтронов при трех различных значениях намагниченности референтного слоя дает амплитуду и фазу волн, отраженных от изучаемой структуры. С использованием теории обратного рассеяния однозначно определяется оптический потенциал и тем самым структура. Как было показано в § 7.5, в структурах с референтным (фазосдвигающим) слоем можно создать резонансно усиленное нейтронное поле. В таком поле методом изотопно-идентифицирующей рефлектометрии также можно организовать измерение фазы коэффициента отражения [Никова и др., 2019].

При моделировании поведения коэффициентов зеркального отражения и количественной обработке результатов эксперимента чаще всего используют рекуррентный подход Паррата, развитый им в 1950-х годах в рентгеновской рефлектометрии и матричный метод, предложенный в свое время в оптике видимого света. У каждого из этих методов есть свои преимущества и недостатки, но при этом они дают сходные результаты и не нуждаются в больших вычислительных ресурсах. В случае незеркального рассеяния вычисления становятся сложнее, поскольку теперь требуется выход за рамки первого борновского приближения (§ 8.3, [Toperverg, 2015]).

#### § 15.4. Трехмерная рефлектометрия

В этом параграфе мы рассмотрим полимерные многослойные наноконкомпозиты с целью демонстрации всех особенностей современной нейтронной рефлектометрии [Lauter et al., 2012]. Большие возможности нейтронной и рентгеновской рефлектометрии проявились уже в 1990-х годах, когда получили развитие технологии формирования поверхностей и межфазных границ многослойных полимерных материалов с целью получения новых функциональных свойств. Например, введение магнитных наночастиц в смесь полимеров открыло путь к созданию магнитных полимеров. Соответственно, появилась потребность характеристики таких систем, чтобы контролировать их структуру и симметрию, размеры и форму связанных с наночастицами

образований. В отличие от всех других методов анализа структуры нейтронная рефлектометрия позволяет «заглянуть» внутрь, особенно в случае магнитных систем, и на уровне мезо- и наномасштаба определить морфологию появляющихся структур на поверхности, в слоях и границах между слоями в многослойных системах. При этом помимо характеристики образцов были обнаружены и исследованы характерные для наносистем явления, например, самоорганизация в полимерных наноккомпозитах.

Исследование многослойных полимеров стимулировало и развитие нейтронной рефлектометрии. Дело в том, что добавление наночастиц внутрь слоистых структур нарушает условия зеркального отражения и приводит к эффектам трехмерного рассеяния, которые имеют диффузный характер и получили название незеркального рассеяния (НЗР, off-specular) и малоуглового рассеяния при скользящем падении (МУР-СП, GI-SANS). Вместе с зеркальным отражением диффузное и малоугловое рассеяние составляет полную 3D рефлектометрию. В ряде случаев только такая полная рефлектометрия может дать полное описание процессов рассеяния в многослойных структурах пониженной размерности.

#### 15.4.1. Сечение рассеяния при скользящем падении

Основы нейтронной рефлектометрии были рассмотрены в §§ 3.2 и 7.4. Здесь будет сделано обобщение этой теории [Lauter et al., 2012]. Рассмотрим в общем виде иерархию вкладов сечения рассеяния при скользящем падении. Разделим полный потенциал взаимодействия на две части:

$$V(\vec{r}) = \bar{V}(z) + \Delta V(\vec{r}), \quad (15.4.1)$$

$\bar{V}(z)$  – основная часть, усредненная по латеральным координатам и соответственно не зависящая от них,  $\Delta V(\vec{r})$  – возмущение, зависящее от трехмерного вектора  $\vec{r}$ . В случае потенциала (15.4.1) выражение для сечения рассеяния распадается на три различных слагаемых

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{зерк.}} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{незерк.}} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{МУР-СП}}, \quad (15.4.2)$$

описывающих зеркальное отражение, незеркальное рассеяние и малоугловое рассеяние, соответственно.

Сечение рассеяния при зеркальном отражении

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{зерк.}} = S_r(\alpha_0) R(q_z) \delta(\alpha_0 - \alpha_1) \delta(\phi), \quad (15.4.3)$$

пропорционально произведению площади сечения рассеяния пучка  $S_r(\alpha_0)$ , «высвеченного» на поверхности образца, коэффициента отражения  $R(q_z)$  и двух  $\delta$ -функций. Первая формализует закон Снеллиуса  $\alpha_1 = \alpha_0$ , где  $\alpha_1$  и  $\alpha_0$  углы отражения и скольжения, соответственно. Вторая  $\delta$ -функция обозначает, что



$\phi_1 = 0$ , если азимутальный угол падающего пучка  $\phi_0$  равен нулю. Эти  $\delta$ -функции ответственны за сохранение латеральных компонент волнового вектора в соответствии с инвариантностью потенциала  $\bar{V}(z)$  по отношению произвольных трансляций в плоскости образца. В результате  $q_x = k(\cos \alpha_1 \cos \phi_1 - \cos \alpha_0) = 0$  и  $q_y = k \sin \phi_1 = 0$ . Экспериментально зеркальное отражение «высвечивается» на позиционно-чувствительном детекторе (ПЧД) узким  $\delta$ -образным пиком, ширина которого определяется функцией разрешения.

Введем для дальнейшего обозначения:  $\vec{k}_0$  и  $\vec{k}_1$  – волновые вектора падающего и отраженного пучков;  $p_0 = k_0 \sin \alpha_0$  и  $p_1 = k_1 \sin \alpha_1$  – проекции на нормаль к поверхности.  $q_z = p_0 + p_1$  – импульс передачи перпендикулярно поверхности.

Площадь засветки  $S_r(\alpha_0)$  соответствует сечению рассеяния зеркального отражения и зависит от геометрии эксперимента: от размера и формы образца, от конфигурации падающего пучка и пр. Однако  $S_r(\alpha_0)$  влияет только на сечение рассеяния зеркального рассеяния, но не на сечение незеркального рассеяния и МУРН-СП.

В первом порядке борновского приближения искаженных волн последние могут быть описаны средними значениями квадрата модуля матричных элементов потенциала возмущения (см. § 8.3):

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{незерк.}} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{МУРН-СП}} = \left\langle \left| \frac{m}{2\pi\hbar^2} \int d\vec{r} \Psi_1(\vec{r}) \Delta V(\vec{r}) \Psi_0(\vec{r}) \right|^2 \right\rangle. \quad (15.4.4)$$

Здесь потенциал возмущения  $\Delta V(\vec{r}) = (2\pi\hbar^2/m) \Delta N b(\vec{r})$  окружен волновыми функциями падающей  $\Psi_0(\vec{r}) = \psi_0(z) \exp(i\vec{k}_0 \vec{\rho})$  и отраженной  $\Psi_1(\vec{r}) = \psi_1(z) \exp(-i\vec{k}_1 \vec{\rho})$  нейтронных волн, определенных потенциалом  $\bar{V}(z)$ . Последний не зависит от 2D латеральной проекции  $\vec{\rho}$  3D-мерного вектора  $\vec{r}$  и, следовательно, волновые функции в произведении факторизованы. Усреднение в (15.4.4) проводится по всем площадям когерентности (§ 15.3.2), покрывающим образец падающим пучком.

Полагая, что все площади когерентности одинаковы и много меньше размера образца и сечения рассеяния пучка, предыдущее выражение можно переписать в виде

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{незерк.}} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{МУРН-СП}} = S_{\text{расс.}} \int dz' \int dz \psi_1^*(z') \psi_1(z) G(z', z; \vec{q}_{\parallel}) \psi_0(z') \psi_0^*(z), \quad (15.4.5)$$

где  $S_{\text{расс.}} = S_{\text{расс.}}(\alpha_0)$  – область образца, освещенная падающим пучком. В отличие от зеркального отражения,  $S_{\text{расс.}} = S_{\text{обр.}}$  при  $\alpha_0 < \alpha_c$ , то есть не зависит от угла

падения. В то же время  $S_{\text{расс.}} = S_{\text{обр.}}/\alpha_0$  уменьшается как  $1/\alpha_0$  при  $\alpha_0 \gg \alpha_c$ , когда часть образца находится вне падающего пучка.

Функция

$$G(z, z'; \bar{q}_{\parallel}) = \int d\bar{\rho} e^{-i\bar{q}_{\parallel}\bar{\rho}} \langle \Delta Nb(\bar{\rho}, z') \Delta Nb(0, z) \rangle_{\parallel}, \quad (15.4.6)$$

в уравнении (15.4.5) является 2D преобразованием Фурье корреляционной функции отклонений  $\Delta Nb(\vec{r})$ , где  $Nb(\vec{r})$  – плотность длины рассеяния (ПДР),  $N$  – средняя объемная плотность ядер со средней длиной рассеяния  $b(\vec{r})$ .

Разница латеральных компонент  $q_x \ll q_y$  волнового вектора передачи  $\bar{q}_{\parallel}$  может быть при скользящем падении в несколько порядков. Это означает, что  $q_x$  отражает много большие расстояния, чем  $q_y$ . Поэтому есть все основания разделить в (15.4.6) усреднение по  $y$  и  $x$  направлениям с помощью разделения отклонения ПДР на сумму

$$\Delta Nb(\vec{r}) = \overline{\Delta Nb}^y(x; z) + \Delta Nb'(x; y; z), \quad (15.4.7)$$

где первое слагаемое есть результат усреднения по  $y$ -направлению в пренебрежении вклада короткодействующих латеральных отклонений ПДР от среднего значения.

Второй член  $\Delta Nb'(x; y; z) = \Delta Nb(\vec{r}) - \overline{\Delta Nb}^y(x; y; z)$  учитывает оставшиеся короткодействующие корреляции. При этом  $\overline{\Delta Nb}^y(x; y; z) = 0$  после усреднения по  $y$ -направлению. Разделение корреляций по радиусу действия приводит к разделению корреляционных функций в (15.4.6), которое принимает вид

$$G(z', z; \bar{q}_{\parallel}) = G_l(z', z; q_x) 2\pi\delta(q_y) + G_s(z', z; q_x, q_y), \quad (15.4.8)$$

где функция

$$G_l(z', z; q_x) = \int dx e^{-iq_x x} \langle \overline{\Delta Nb}^y(x, z') \overline{\Delta Nb}^y(0, z) \rangle, \quad (15.4.9)$$

описывает дальнедействующие корреляции, усредненные по ближним расстояниям. Эти корреляции входят в экспериментально наблюдаемую величину сечения рассеяния

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{незерк.}} = \frac{S_{\text{расс.}} \lambda}{\cos \alpha_1 \cos \varphi_1} \delta(\phi_1) \int dz' \int dz \psi_1^*(z') \psi_1(z) G_l(z', z; q_x) \psi_0(z) \psi_0^*(z'), \quad (15.4.10)$$

в виде  $\delta$ -образного пика, центрированного относительно азимутального угла  $\phi_0 = 0$  с шириной, определяемой функцией разрешения. Хотя эта ширина может увеличиваться в зависимости от компоненты волнового вектора  $p_1$ . Интенсивность пика зависит от падающего волнового числа  $p_0$ . Распределение интенсивности рассеяния в зависимости от  $p_0$  и  $p_1$  можно представить в виде

карты в координатах  $q_z$  и  $q_x$ . Проинтегрированное по азимутальному углу  $\phi$  рассеяние при  $q_x = 0$  и есть собственно незеркальное рассеяние.

Узкие при  $q_y$  пики могут трансформироваться в широкие из-за второго слагаемого в выражении для корреляционной функции (15.4.6). Этот процесс, называемый малоугловым рассеянием при скользящем падении, описывается тем же уравнением (15.4.4), в котором отклонение ПДР  $\Delta Nb(x, y; z)$  заменено на  $\Delta Nb'(x, y; z)$ . Эти отклонения коррелируют только на коротких расстояниях:

$$G_s(z, z'; q_y) = \int dy e^{-iq_y y} \int dx \langle \Delta Nb'(\bar{\rho}, z) \Delta Nb'(0, z') \rangle, \quad (15.4.11)$$

где зависимостями при  $q_x \ll q_y$  можно пренебречь.

Однако даже в этом случае сечение рассеяния МУРН при СП может сильно зависеть от  $p_0$  и  $p_1$ . Этот эффект обусловлен средним оптическим потенциалом, который существенно искажает падающие и отраженные плоские волны, использованные в (15.4.4), согласно борновскому приближению. В противоположность этому в борновском приближении искаженных волн в уравнении (15.4.4) надо использовать волновые функции, которые определяются средним оптическим потенциалом  $\bar{V}(z)$ . Эти волновые функции могут быть вычислены, например, с помощью итерационного формализма Паррата, который широко применяется при описании зеркального отражения и определения многослойных структур с помощью численного моделирования и автоматической подгонки экспериментальных данных к расчетным кривым.

#### 15.4.2. Зеркальное отражение

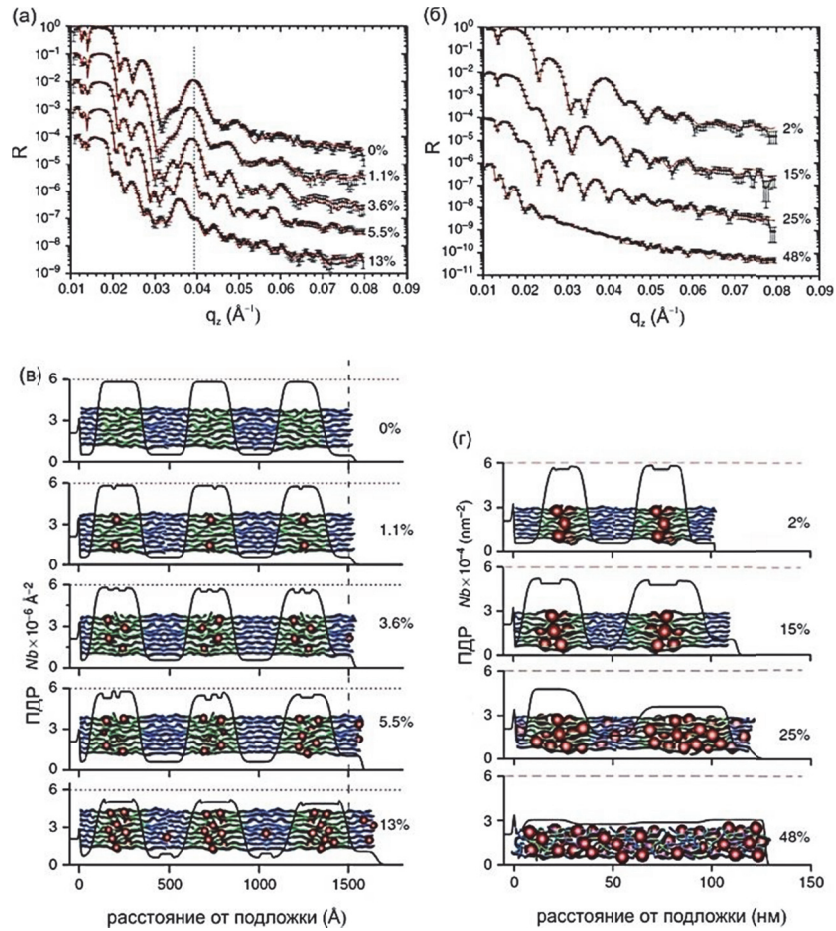
Долгое время зеркальное рассеяние успешно использовалось для изучения многослойных полимерных пленок. Как правило, это делалось без учета эффектов незеркального рассеяния, либо эти эффекты учитывались феноменологически с помощью множителя типа Дебая-Валлера (§ 3.2).

В качестве конкретного примера будут рассмотрены двублочные со-полимеры, особенностью которых является образование ламеллярных микродоменов, параллельных поверхности подложки с ламинарной ориентацией. Идентификация микродоменов, формирующих многослойную структуру, даст больше информации о морфологии и межфазных неоднородностях (шероховатостях). Включение наночастиц в полимерную пленку является важным шагом для создания новых композитных пленок с заданными свойствами.

Были приготовлены смеси со-полимеров дейтерированного (d) полистирола PS и блочного (b) полибутиметакрилата PBMA: PS-d-b-PBMA с молекулярной массой  $M_w = 187000 \text{ g mol}^{-1}$  и PS, покрытый наночастицами магнетита на кремниевых подложках. Были исследованы два набора образцов с различным диаметром наночастиц  $D_p$  малым ( $D_p = 0.2L_{ps}$ ) и большим ( $D_p = 0.45L_{ps}$ ) по сравнению с ламеллярной толщиной  $L_{ps}$  PS слоя. Средний размер

наночастиц магнетита  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , определенный рассеянием света с точностью до 20%, составлял 5 нм и 11 нм соответственно. Концентрация наночастиц  $\nu$  варьировалась от 0% до 13% для  $D_p = 5$  нм и от 5% до 40% для  $D_p = 11$  нм. Пленки отжигались при  $T = 165$  С в течение 3 часов. В процессе отжига в пленках блоксополимеров происходила спонтанная самоорганизация в ламеллярную многослойную структуру. Ожидалось, что покрытые PS наночастицы будут упорядочиваться в PS слоях.

Рис. 15.4.1в и 15.4.1г демонстрируют профили ПДР, полученные экспериментально и иллюстрированные изображением многослойной композиции.



**Рис. 15.4.1.** (а, б) Зависимость от переданного импульса коэффициента отражения от симметричной слоистой структуры сополимера PS-d-b-PBMA при различных концентрациях наночастиц (обозначены красным) малого размера (в) и большого размера (г). На рис. (в) и (г) зеленым цветом обозначен полимер d-PS, голубым – PBMA. Пунктирная линия на рис.(а) показывают начальное ( $\nu = 0\%$ ) положение брэгговских пиков [Lauter et al., 2012].

Сдвиг брэгговских пиков (начальное положение показано на рис. 15.4.1а пунктирной линией) говорит о том, что полимерные пленки утолщаются при увеличении количества наночастиц. Однако для больших наночастиц при  $\nu > 15\%$  брэгговские пики полностью размываются, показывая, что регулярная слоистая структура исчезает. Рис. 15.4.1в, г являются своеобразным мультфильмом, демонстрирующим основные свойства профиля ПДР, приведенные ниже. Распухание полимерных пленок в зависимости от количества наночастиц происходит за счет распухания только PS слоев, которые содержат наночастицы. Регулярная слоистая структура исчезает для больших наночастиц и при их концентрации  $\nu > 15\%$ , о чем свидетельствует исчезновение брэгговских пиков.

Существенный результат состоит в том, что наночастицы упорядочиваются одновременно с формированием слоистой структуры матрицы. Подслои наночастиц появляются внутри PS слоев матрицы. Единичный подслой наночастиц малого размера формируется в PS слоях при низкой концентрации (рис. 15.4.1в), затем возникают два подслоя при увеличении  $\nu$ , а уже после этого начинается широкое распределение наночастиц в PS слоях при высоких  $\nu$ . Описанная эволюция начинается при малых  $\nu$  во внешнем слое.

Детальный анализ показывает, что большие наночастицы имеют широкое распределение уже при малых концентрациях (рис. 15.4.1г) и не в виде узкого типа листа распределения, как в случае малых наночастиц. При более высоких концентрациях наночастиц наблюдается разрушение внутреннего устройства слоев в пленке.

Ширина межфазных границ между двумя полимерами также может быть определена из экспериментов по зеркальному отражению. Она зависит от среднего квадрата амплитуды шероховатостей интерфейсов. Однако характеристики шероховатостей скрыты в незеркальном рассеянии.

### 15.4.3. Незеркальное рассеяние

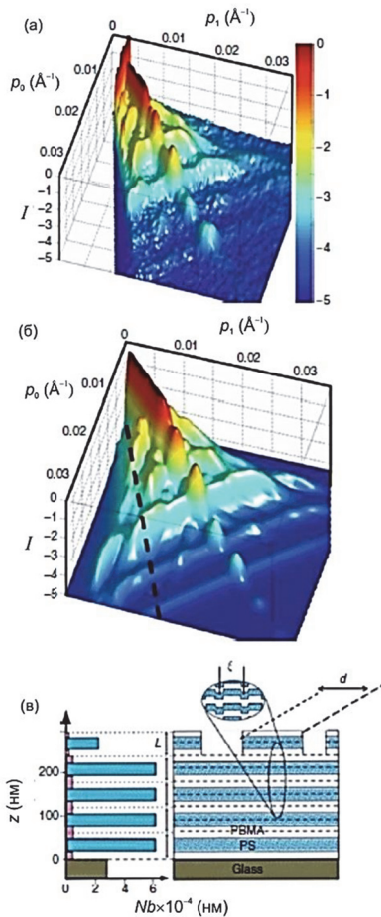
Незеркальное рассеяние включает в себя все процессы рассеяния, не отображаемые зеркальным отражением. Если опираться на рассмотрение предыдущего раздела, то незеркальное рассеяние даст информацию о форме, размерах и корреляциях наблюдаемых в зеркальном отражении объектах в латеральных направлениях (в плоскости образца).

Сканирование по  $\vec{p}_0$  и запись зависимости интенсивности от  $\vec{q}_1^{\text{off-x}}$  дает распределение интенсивности рассеяния в пространстве импульсов. Его можно изобразить в виде функции как от  $p_0$  и  $p_1$ , так и от  $q_z$  и  $q_x$ . Далее используются координаты  $p_0$  и  $p_1$  или  $p_0 - p_1$  или  $p_0 + p_1$ . Зеркальное рассеяние представлено зависимостью от  $\vec{p}_0$ , тогда как в отличие от  $\vec{p}_1^{\text{spec}}$ ,  $\vec{p}_1$  включает  $\vec{p}_1 - \vec{p}_0$  в качестве маркера незеркального рассеяния. Далее, полосы интенсивности незеркального рассеяния соответствуют в первом порядке линейной функции в этих

координатах, которая позволяет отделить незеркальное рассеяние от других источников рассеяния.

В этом разделе мы сконцентрируемся на незеркальном рассеянии вдоль  $q_x$ . Рассмотрим в качестве иллюстрации пример, приведенный на рис. 15.4.2.

Исследовалась многослойная смесь полимеров PBMA-PS-PBMA, схематически изображенная на рис. 15.4.2в. Эксперименты проводились на рефлектометре СПН-2 (§15.3) на реакторе ИБР-2 (ОИЯИ, Дубна). Интенсивность зеркального отражения на рис. 15.4.2а проходит по линии наиболее высоких пиков при  $p_0 = p_1$ , в направлении  $q_z$  и отражает пики Брэгга, соответствующие структуре, схематически изображенной на рис. 15.4.2в. То же самое относится и к модельному расчету на рис. 15.4.2б. Незеркальное рассеяние в направлении  $q_x$  отображается в виде полос под углами  $\pm 45^\circ$  и  $\pm 90^\circ$  по отношению к линии зеркального отражения с началом либо при критическом импульсе передачи  $q_c$ , либо при переданном импульсе, соответствующем пикам Брэгга  $q = q_{\text{Брэгг}}$ . Наглядное изображение картины рассеяния дано на рис. 15.4.3 и 15.4.4.

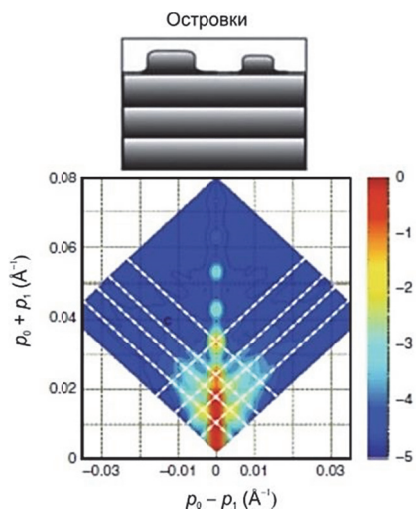


**Рис. 15.4.2. (а)** 2D карта интенсивностей ( $I$ ) как функция импульсов  $p_0$  и  $p_1$  полимерной пленки (PBMA-PS-PBMA) с периодом  $L$ , изображенной на рисунке 15.4.3(б).

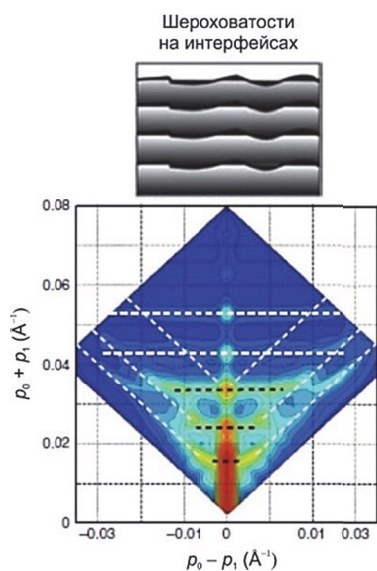
**(б)** Модельный расчет по экспериментальным данным.

**(в)** Усредненная ПДР (левая часть рисунка) многослойной структуры (правая часть).  $d$  – средний диаметр островков на поверхности ( $d = 900$  нм),  $\xi$  – длина корреляций шероховатостей на интерфейсах ( $\xi = 150$  нм) [Lauter et al., 2012].

Показанный на рис. 15.4.3 и 15.4.4 тип незеркального рассеяния при  $q = q_c$  и под углом  $45^\circ$  к линии зеркального отражения называется рассеянием Йонеды (Yoneda) и супер рассеянием Йонеды соответственно. При  $q_c$  и  $q_{\text{Брэгг}}$  в образце порождается нейтронное поле высокой интенсивности в результате незеркального рассеяния на неоднородностях образца. Итак, интенсивность незеркального рассеяния от образца порождается нейтронами с  $\vec{p}_0$  при  $q = q_c$  или  $q_{\text{Брэгг}}$  из-за МУРН внутри образца в зависимости от  $p_1$ . Распределение интенсивности вдоль полос на картах интенсивности рассеяния отражает распределение размеров неоднородностей или их корреляций внутри пленки.



**Рис. 15.4.3.** Модельный расчет зеркального и незеркального отражения на многослойном полимере, изображенном на рис. 15.4.2в и в верхней части данного рисунка [Lauter et al., 2012].



**Рис. 15.4.4.** Модельный расчет для многослойного полимера, изображенного на рис. 15.4.2 в, относительно конформных шероховатостей на интерфейсах (верхняя часть данного рисунка) [Lauter et al., 2012].

Если условие Брэгга  $\vec{q}_{\text{Брэгг}} = \vec{p}_0 + \vec{p}_1$  выполняется для рассеяния внутри образца также и для значений  $\vec{p}_0$  и  $\vec{p}_1$ , не являющихся компонентами брэгговских пиков, то интенсивности высокой интерференции возникают внутри слоев образца и незеркальное рассеяния в виде листов Брэгга (Bragg-sheet scattering) будет выходить перпендикулярно хребту зеркального отражения. Этот тип рассеяния возникает, когда, например, совокупность шероховатостей на интерфейсах является конформной. В этом случае условие Брэгга выполняется микроскопически на уровне спектра шероховатостей. Когда конформность между интерфейсами изменяется в сторону неконформных шероховатостей, интенсивность брэгговских листов утрачивает параллельность.

Анализ 2D карт интенсивностей рассеянных и отраженных нейтронов от многослойной полимерной пленки d-PS-PBMA начинается с подгонки распределения интенсивности вдоль зеркального отражения. Эта подгонка дает слоистую структуру, показанную на рис. 15.4.2в.

Основные эффекты за пределами зеркального отражения – это боковые крылья незеркального рассеяния, формирующиеся около брэгговских пиков. Измеренная 2D карта интенсивностей, показанная на рис. 15.4.2а преобразуется в рис. 15.4.2б на основе модели на рис. 15.4.2в с полученными из подгонки параметрами. Как видно, многослойная структура состоит из пяти слоев L(PBMA-PS-PS-PBMA), ПДР которой показан на рис. 15.4.2в. Верхний слой не заполнен непрерывно, но состоит из островков в той же последовательности (PBMA-PS-PS-PBMA). Средняя ПДР этого слоя определяется плотностью островков. Кроме того, все интерфейсы имеют шероховатости. Характеристические латеральные длины, соответствующие этим двум объектам рассеяния, суть средний диаметр  $d$  островков и корреляционная длина  $\xi$  шероховатостей. Характеристики вертикального направления суть состав островков и распределение высоты шероховатостей. На рис. 15.4.4 и 15.4.5 показаны эти два типа рассеяния в виде двух совокупностей интенсивностей, соответственно, в координатах  $\vec{p}_0, \vec{p}_1$ .

Рис. 15.4.4 демонстрирует карту интенсивностей, когда выделены параметры рассеяния только от островков. Интенсивность зеркального отражения в этом сюжете распространяется вдоль направления  $\vec{p}_0 + \vec{p}_1$  при  $\vec{p}_0 - \vec{p}_1 = 0$ . Незеркальное рассеяние концентрируется вдоль пунктирных линий и показывает характерные черты рассеяния Йонеды. Интенсивности последнего исходят от критического значения переданного импульса  $q_z$ , соответствующего зеркальному отражению  $q_z = p_0 + p_1$ . Интенсивности супер рассеяния Йонеды исходят от положений рассеяния Брэгга.

Следовательно, распределение интенсивностей вдоль и около линий Йонеды дает информацию о составе островков и зависит от их сечения рассеяния в интерференционном поле исходно матрицы. Необходимо подчеркнуть, что предполагается предел низких концентраций, когда корреляциями между



островками можно пренебречь. Предполагается экспоненциальное распределение диаметра островков, что позволяет получить усредненное значение диаметра  $d$  (см. модель на рис. 15.4.2в). При этом учтено и усреднение по экспериментальному разрешению. Возможное более плавное изменение форм-фактора вне линии зеркального отражения учитывалось оценочным образом только вдоль полос рассеяния и супер рассеяния Йонеды. Среднее значение диаметра островка получается в результате подгонки латерального форм-фактора  $L_{01}$ .

На рис. 15.4.4 тоже видны полосы интенсивности, которые отражают влияние исходной матрицы на распределение плотности рассеяния в выделенных направлениях. Два набора полос интенсивности ясно различимы. Один набор вдоль рассеяния и супер рассеяния Йонеды, как на рис. 15.4.3. Другие полосы интенсивности, обозначенные утолщенными пунктирными линиями (черного цвета) удовлетворяют условию Брэгга. При этих условиях в пленке всегда возникают осцилляции интенсивности из-за резонанса интенсивностей от конформных шероховатостей. Если условие Брэгга не выполнено или не удовлетворяется из-за неконформности, например, между шероховатостями, тогда листы брэгговского рассеяния уменьшаются или совсем исчезают.

Сильный эффект в незеркальном рассеянии – это появление модуляции интенсивности вдоль линий аномального отражения при  $p_0 - p_1 = 2\pi n/L$  на рис. 15.4.5, где  $L$  – толщина слоя ( $L = 61$  nm). Эти линии хорошо видны при  $p_0 - p_1 = \pm 0.0092 \text{ \AA}^{-1}$  и  $p_0 - p_1 = \pm 0.0018 \text{ \AA}^{-1}$ . Сдвиги фазы в направлении  $p_0 - p_1$  эквивалентны сдвигам между положениями пиков Брэгга вдоль  $p_0 + p_1$ , что свидетельствует о том, что расстояние между шероховатостями в слоях совпадает с расстоянием между слоями в матрице.

2D карта интенсивностей рассеяния от островков в полимерной пленке на рис. 15.4.4 и 2D карта интенсивностей рассеяния от шероховатостей на рис. 15.4.4 отражены суммарно в объемном виде на рис. 15.4.2а и 15.4.2б, что является демонстрацией возможностей метода при описании даже такой сложной ламинарной структуры.

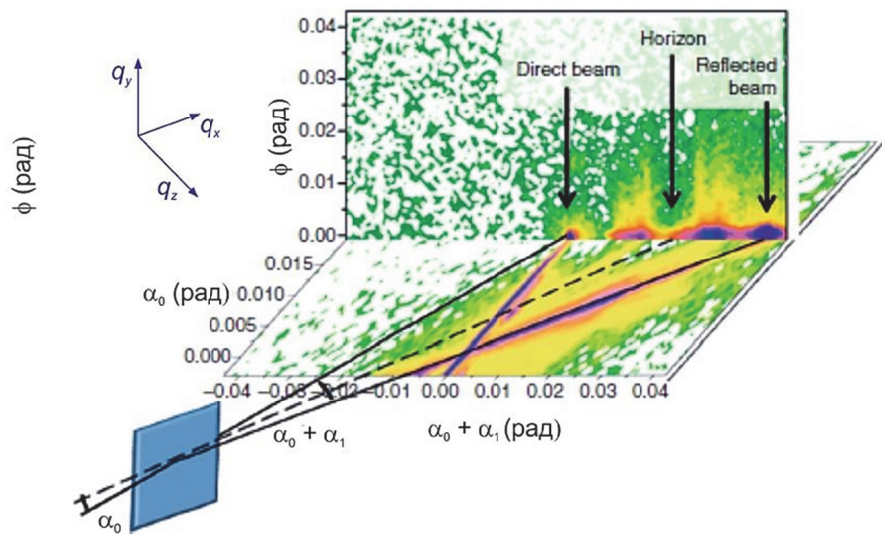
Напомним, что незеркальное рассеяние основано на интерференции нейтронного волнового поля внутри пленки. Слои ПВМА дают высокую интенсивность поля при  $\alpha_0 = 2.7$  мрад, критическом угле, при котором нейтронная волна отражается. Соответствующее значение критического переданного импульса  $q_{z,c}$  видно на левой пограничной линии на рис. 15.4.1а. Высокая интенсивность в PS слоях, контрастируя с низкой интенсивностью в ПВМА слоях при 8 мрад, подчеркивает наличие волнового поля, интенсивность которого осциллирует между PS и ПВМА слоями около положений пиков Брэгга при  $q_z = \pm 0.0017 \text{ \AA}^{-1}$  на рис. 15.4.1а. Следовательно, мы имеем поле интенсивностей,

с помощью которого, сканируя угол падения  $\alpha_0$ , можно определить положение и характеристики рассеивающих объектов внутри многослойной структуры.

На рис. 15.4.3 эти условия обозначены пунктирными линиями, совпадающими с детектируемыми линиями интенсивностей. Эти линии интенсивностей обусловлены высокой интенсивностью нейтронного поля внутри многослойной структуры.

#### 15.4.4. Малоугловое рассеяние при скользящем падении

Теперь перейдем к рассмотрению незеркального рассеяния в направлении  $q_y$ . Обе части незеркального рассеяния (по  $q_x$  и по  $q_y$ ) происходят от объектов рассеяния внутри слоя или многослойной структуры и мы их обозначим здесь как  $\bar{q}_1^{\text{off}-x}$  и  $\bar{q}_1^{\text{off}-y}$  соответственно. По традиции часть незеркального рассеяния  $\bar{q}_1^{\text{off}-x}$  называют *незеркальным рассеянием* или диффузным, а часть  $\bar{q}_1^{\text{off}-y}$  – малоугловым рассеянием при скользящем падении (МУР-СП). Надо понимать, что природа обеих частей одна, а разделение на две части обусловлено постановкой эксперимента, поскольку незеркальное рассеяние (диффузное рассеяние),  $\bar{q}_1^{\text{off}-x}$ , связано с дальнедействующими корреляциями, а МУР-СП,  $\bar{q}_1^{\text{off}-y}$  – с короткодействующими. Эти две части незеркального рассеяния ортогональны друг другу, так что корреляции в плоскости образца или в объеме могут быть разделены по двум направлениям.



**Рис. 15.4.5.** Изображение на позиционно-чувствительном детекторе (ПЧД) при постоянной длине волны при падающем угле рассеяния  $\alpha_0$ . Детектируемая интенсивность показана как функция  $\alpha_0 + \alpha_1$  и  $2\phi$ .  $2\phi$  – угол между двумя симметричными векторами  $k_1$ . Интенсивности цветов в двух плоскостях не нормированы [Lauter et al., 2012].

Экспериментальная конструкция пространства интенсивностей, как функции трех координат в обратном пространстве начинается на рис. 15.4.5 с 2D карты интенсивности при постоянной длине волны при фиксированном угле падения  $\alpha_0$ . В данном случае образец был тот же самый, PS-PBMA, как многослойная структура, показанная на рис. 15.4.3 при объемной концентрации наночастиц  $v = 0$ . Интенсивность на 2D детекторе записывается как функция полного угла рассеяния  $\alpha_0 + \alpha_1$  и отклонения азимутального угла  $\phi$  от плоскости зеркального отражения. При  $\alpha_0 + \alpha_1 = 0$  и  $\phi = 0$  на рис. 15.4.5 видна интенсивность прямого пучка. С увеличением  $\alpha_0 + \alpha_1$  появляется незеркальное рассеяние при пересечении пучком образца до его выхода в плоскость образца – линия горизонта, по обе стороны от которой рассеяния нет, что является следствием наличия критических углов. Далее появляется два пятна интенсивности незеркального рассеяния и затем пятно зеркального отражения. Незеркальное рассеяние по направлению  $\alpha_0 + \alpha_1$  за пиком зеркального рассеяния на рис. 15.4.5 не видно. Ясно видно появление из всех пятен незеркального рассеяния малоуглового рассеяния вдоль  $q_y$ . Этот рисунок дает первое впечатление, как выглядит 3D распределение интенсивностей. Отсюда можно видеть, что МУРН,  $\bar{q}_1^{\text{off-}y}$ , действительно появляется в связи с незеркальным рассеянием.

Главный вывод состоит в том, что подгонка 2D карт интенсивностей к экспериментальным данным определяется введением шероховатостей на интерфейсы и не зависит от шероховатостей внутри PS слоев, наводимых наночастицами. Обратим внимание на достаточно высокую конформность осцилляций шероховатостей на PBMA-PS интерфейсах сквозь многослойную структуру; в противном случае листы брэгговского рассеяния были бы подавлены и его интенсивность перешла бы в рассеяние Йонеды. Модельная подгонка выявила параметры, подавляющие конформность примерно в два раза при переходе концентрации наночастиц от нуля к  $v = 13\%$ . Следовательно, наночастицы инициируют связь осцилляций шероховатостей между интерфейсами. Эта связь является важным параметром стабилизации многослойной структуры и, таким образом, для конструирования функционального интерфейса, а также инициирования фазовых переходов в системе.

Для реализации полной 3D рефлектометрии должны быть соединены все картины типа рис. 15.4.5 с детекторов при различных  $\alpha_0$ . Однако результат не может быть визуализирован полностью.

В заключение этого параграфа отметим, что метод полной рефлектометрии, который включает в себя три элемента: зеркальное отражение, незеркальное рассеяние и МУРН-СП находится, как видно из приведенных примеров, на разной стадии развития для разных по однородности систем, но,

очевидно, что именно комбинация всех трех типов рассеяния при скользящем падении представляет собой мощный метод исследования систем с пониженной размерностью.

Разделение незеркального рассеяния, которое включает в себя рассеяние Йонеды, листы Брэгга, и МУРН-СП имеет историческое происхождение. Все три типа рассеяния имеют природу незеркального рассеяния, но в разных плоскостях и с разной чувствительностью к рассеивающим неоднородностям. Последнее является главным и выделение трех компонент незеркального рассеяния служит именно для более детального анализа структуры многослойных систем и на практике далеко не всегда удается, поскольку требует хорошего оборудования и понимания процессов, описанию которых посвящена эта глава.

Что касается предмета исследования, то слоистые полимеры представляют собой хороший пример удачного использования нейтронов. Использование изотопного контраста (дейтерирования в данном случае) является мощным инструментом для создания контраста рассеяния и выделения отдельных деталей структуры. Важен также неразрушающий характер нейтронной диагностики. Так что сочетание современных технологий и нейтронной диагностики является мощным методом структурного дизайна многослойных полимерных систем.

### § 15.5. Перспективы развития

Развитие любого экспериментального метода определяется многими факторами, среди которых определяющими являются востребованность метода и преодоление технических ограничений на пути достижения более высоких параметров экспериментальной установки. Как следует из предыдущих параграфов, востребованность нейтронной рефлектометрии, незаменимой при изучении структуры внешних и внутренних поверхностей тонких пленок с высоким пространственным разрешением, будет только возрастать. Однако из-за низкой интенсивности нейтронных потоков, по сравнению с рентгеновскими лучами, для получения данных с высокой статистикой требуется большое время измерений. Размер нейтронного пучка в рефлектометрическом эксперименте ограничен геометрией скользящего падения, в которой при предельно малых углах падения лишь небольшая доля нейтронов от источника попадает на поверхность образца. Поэтому для получения удовлетворительной статистики нужны достаточно большие поверхности образцов. Таким образом, нейтронная рефлектометрия, особенно с использованием поляризованных нейтронов, остается привилегией источников с высокими потоками (см. гл. 9).

Можно надеяться, развитие нейтронной рефлектометрии послужит стимулом для создания новых высокопоточных источников нейтронов и для совершенствования нейтронно-оптических систем и детекторов. Нет сомнений, что в ближайшее время наибольшее развитие получат измерения в реальном времени для изучения неравновесных и кинетических явлений, таких как

диффузия в слоях, адсорбция, фазовые расслоения и изменения структур с течением времени. Значительные перспективы имеет рефлектометрия поляризованных нейтронов в реальном времени, поскольку дополнительно позволяет получать уникальную качественную и количественную информацию о динамике процессов, в частности под воздействием внешних магнитных полей. Подобная информация, несомненно, будет представлять фундаментальный физический и практический интерес, например для понимания работы и функциональных возможностей спинтронных устройств на основе магнитных нано- и гетероструктур в режимах их скоростного перемагничивания, для изучения факторов, влияющих на их динамические характеристики, в частности на быстроедействие.

Можно отметить еще целый ряд направлений, развитие которых сдерживается недостаточно высокими потоками нейтронов. Огромное число научных задач не решается из-за невозможности произвести образцы достаточных размеров. Пока еще недостаточно развит такой мощный метод получения бесценной информации, как МУРН-СП. Повышение светимости источников откроет путь для изучения систем пониженной размерности в трехмерном представлении.

Отметим еще одно перспективное направление исследований с повышенной точностью определения структурных параметров, основанное на использовании резонансного усиления нейтронного волнового поля в режиме полного отражения (§ 7.5). Интересные перспективы открывает изотопно-чувствительная нейтронная рефлектометрия, в основе которой лежит метод усиления вторичного излучения внутриядерных процессов после захвата нейтронов примесными атомами в резонансных многослойных структурах. Для магнитных квазидвумерных наноструктур новые возможности прецизионного измерения неоднородностей магнитных состояний открывает метод регистрации изменения спинового состояния нейтрона в поле усиленных стоячих волн поляризованных нейтронов.

В последнее время получили развитие две методики, естественным образом примыкающие к рефлектометрии, основанной на интерференции нейтронных волн, распространяющихся вдоль направления падающего скользящего пучка. Это дифракция при скользящем падении, в основе которой лежит интерференция нейтронных волн, распространяющихся под определенными углом к направлению падающего пучка, а также неупругое рассеяние на возбуждениях поверхности. Дифракция при скользящем падении, например, может дать дополнительную важную информацию о магнитных доменах, ориентированных перпендикулярно поверхности. Очевидно, эти методики вместе с трехмерной рефлектометрией обеспечат полное описание исследуемого материала.

Можно ожидать, что совместное развитие источников, систем формирования пучков и регистрации нейтронов и методик нейтронной

рефлектометрии приведет к прогрессу в понимании новых явлений в физике систем пониженной размерности и к созданию новых материалов с заданными свойствами.

#### Рекомендуемая литература к главе 15

Аксенов В.Л., Никитенко Ю.В. (2007), *Нейтронная поляризационная рефлектометрия на импульсном реакторе ИБР-2*, Кристаллография **52** 564 – 572.

Никитенко Ю.В., Сыромятников В.Г. (2013), *Рефлектометрия поляризованных нейтронов*, М: Физматлит.

Lauter H.J.C., Lauter V., Toperverg B.P. (2012), *Reflectivity, Off-Specular Scattering, and GI-SAS: Neutrons*. In: Polymer Science: A Comprehensive Reference, Vol. 2 pp. 411-432. Amsterdam: Elsevier BV.

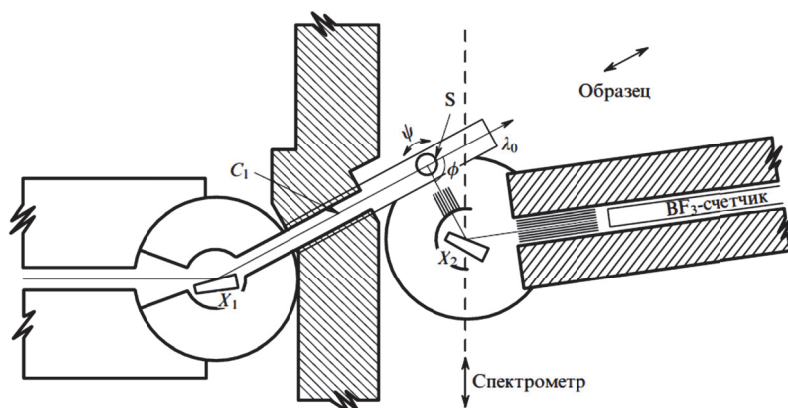
Torikai N. (2011), *Neutron Reflectometry*, In: Neutrons in Soft Matter. New Jersey: John Walley & Sons Inc., pp.115-146.

## ГЛАВА 16. НЕУПРУГОЕ РАССЕЯНИЕ (НЕЙТРОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ)

### § 16.1. Общие замечания

В отличие от дифракции или малоуглового рассеяния при неупругом рассеянии изменяется не только направление волнового вектора нейтрона, но и его энергия. Анализ эффектов, сопровождающих изменение энергии, позволяет получить информацию об атомной и магнитной динамике вещества, и далее – о силах, действующих между атомами или молекулами. Разнообразные экспериментальные методы, использующие неупругое рассеяние нейтронов, объединяются общим названием *нейтронная спектроскопия*.

Теоретическое рассмотрение неупругого взаимодействия нейтрона с кристаллом было проведено еще в конце 1940-х годов в нескольких работах и фактически в близком к современному виду изложено в монографии [Ахиезер, Померанчук, 1950]. Но первые полноценные эксперименты с наблюдением взаимодействия нейтронов с тепловыми колебаниями атомов удалось выполнить только в середине 1950-х годов на реакторах в Брукхейвене (Brookhaven, США) и Чок-Ривере (Chalk River, Канада). В Брукхейвене они были сделаны на спектрометре по времени пролета (Д.Юз), а в Чок-Ривере будущим лауреатом Нобелевской премии Бертраном Брокхаузом на установке, изображенной на рис. 16.1.1, которую можно рассматривать как прототип современного трехосного спектрометра. Подробный обзор этих первых экспериментов сделан самим Брокхаузом в его нобелевской лекции [Брокхауз, 1995].



**Рис. 16.1.1.** Прототип трехосного нейтронного спектрометра, на котором были выполнены первые эксперименты по наблюдению неупругого рассеяния тепловых нейтронов в кристаллах на реакторе NRX (Канада). Монокристаллы  $X_1$  и  $X_2$  используются как монохроматор и анализатор, нейтроны с длиной волны  $\lambda_0$  рассеиваются на образце S и регистрируются  $\text{BF}_3$ -счетчиком. Рисунок из работы [Брокхауз, 1995].

Хорошо известно, что эффективность тепловых нейтронов в исследованиях динамики вещества на атомном уровне связана с соразмерностью их энергии с энергией элементарных возбуждений (атомных и магнитных). Помимо нейтронов, динамика вещества изучается с помощью рассеяния света (в диапазоне от инфракрасного до ультрафиолетового) и синхротронного излучения с длинами волн  $\lambda \sim 2 \text{ \AA}$ . Однако эти методы сталкиваются с определенными ограничениями. Для фотонов связь энергии с длиной волны выражается формулой  $E[\text{эВ}] = h\nu = hc/\lambda \approx 12400/\lambda [\text{\AA}]$ , где  $h$  и  $c$  – постоянная Планка и скорость света,  $\nu$  – частота волны. При неупругом рассеянии видимого света с длиной волны  $\lambda \approx 4000 \text{ \AA}$  ( $E \approx 3 \text{ эВ}$ ) изменение длины его волнового вектора при передаче энергии  $\Delta E \sim kT$  будет незначительным и длина вектора останется малой ( $k_{\text{ph}} = 2\pi/\lambda \approx 2.5 \cdot 10^{-4} \text{ \AA}^{-1}$ ). Следовательно, с помощью света можно изучать только процессы, происходящие в центре зоны Бриллюэна поскольку  $k_{\text{ph}} \ll k_a$ , где  $k_a = \pi/a$  – характерный размер зоны,  $a$  – параметр элементарной ячейки кристалла. В случае синхротронного излучения длина волнового вектора фотонов оказывается подходящей ( $k_{\text{ph}} \approx k_a$ ), но их энергия составляет около  $10^4 \text{ эВ}$  и для регистрации процессов с передачей энергии на уровне  $kT$  требуется исключительно высокая степень монохроматизации. На современных синхротронах (ESRF и др.) удается получить линию с шириной  $\Delta E \approx 0.5 \text{ мэВ}$ . Этого достаточно, чтобы измерять дисперсионные кривые для сравнительно простых соединений, но измерение передач энергии с  $\Delta E < 1 \text{ мэВ}$  фактически невозможно. Связь длины волны излучения и его энергии для нейтронов и синхротронного излучения проиллюстрирована на рис. 16.1.2. При одних и тех же длинах волн разница в энергии этих излучений составляет около 6 порядков.

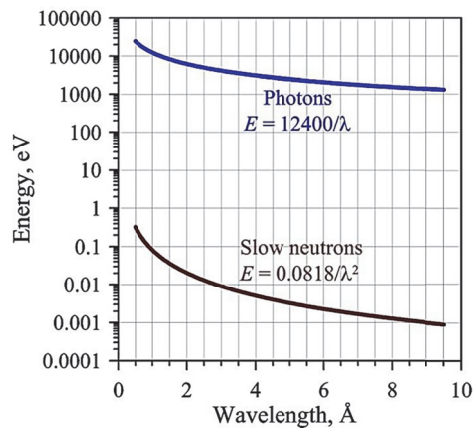


Рис. 16.1.2. Зависимости энергии от длины волны для нейтронов и фотонов (синхротронного излучения) в интервале длин волн (0 – 10) Å.

Уже в первых экспериментах Брокхауза и Юза была продемонстрирована уникальность информации, получаемой методом неупругого рассеяния



нейтронов, и соответствующие спектрометры начали активно создаваться на уже имеющихся и новых источниках нейтронов. В основном, это были трехосные спектрометры и установки с механическими прерывателями с использованием как прямой, так и обратной геометрии. В начале 1970-х годов была придумана техника нейтронного спинового эха, позволившая измерять экстремально малые передачи энергии. Большим шагом вперед стало развитие методики неупругого рассеяния на импульсных источниках нейтронов.

В Советском Союзе нейтронная спектроскопия начала развиваться в 1960-е годы в ИАЭ (Москва) на реакторе ИРТ и в ЛНФ ОИЯИ (Дубна) на импульсном реакторе ИБР. В ИАЭ сначала была создана установка по времени пролета в прямой геометрии, а впоследствии классический трехосный спектрометр [Соменков, 2017]. В ОИЯИ параллельно развивались методы изучения неупругого рассеяния как в прямой, так и в обратной геометриях [Шапиро, 2015].

Описание устройства современных спектрометров можно найти в книгах [Furrer et al., 2009; Carpenter and Loong, 2015; Алексеев, Менушенков, 2012]. Основы методики проведения экспериментов подробно изложены в [Игелстаф, 1970], научные результаты, полученные методом неупругого рассеяния нейтронов к 1980 году – в [Лавси, Шпрингер, 1980], а систематическое изложение теории и многочисленные примеры исследований атомных и магнитных спектров возбуждений – в [Изюмов, Черноплеков, 1983].

В нейтронной спектроскопии широко используется концепция квазичастиц (фононов, магнонов, экситонов и др.), являющихся квантами специфических возбуждений в конденсированных средах. Ее подробное изложение дано в [Киттель, 1978; Брандт и Кульбачинский, 2007; Аксенов и Тропин, 2020].

## § 16.2. Постановка задачи и предмет исследования

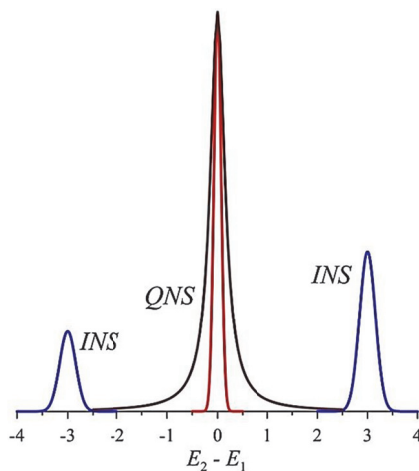
Теория неупругого рассеяния нейтронов в кристаллах и жидкостях изложена в главах 4 – 6. Здесь мы кратко повторим основные понятия.

Большинство фундаментальных свойств конденсированных сред невозможно объяснить без учета атомной и магнитной динамики составляющих их частиц. Колебания атомов около положений равновесия в кристаллах, колебания молекулярных групп, диффузионные движения в жидкостях, флуктуации магнитных моментов – проявления различных типов взаимодействий между атомами, молекулами, электронами. В той или иной степени любые их взаимодействия проявляют себя при рассеянии излучения в конденсированной среде.

При рассеянии нейтронов на кристаллах потеря или приобретение энергии нейтроном связаны с их взаимодействием с квазичастицами. Анализ эффектов этого взаимодействия при рассеянии нейтронов на монокристаллах позволяет восстановить дисперсионные кривые, т.е. связь между частотой нормальных мод колебательных движений атомов и их волновым вектором распространения в

определенном направлении кристаллической решетки. Если эксперимент проводится на поликристалле, то удастся определить плотность фононных состояний – зависимость числа нормальных мод колебаний от частоты. Неупругие эффекты, возникающие при рассеянии нейтронов на кристаллах, находящихся в упорядоченном магнитном состоянии, позволяют определить дисперсионные соотношения для спиновых волн. Типичный диапазон передаваемых энергий при взаимодействии нейтрона с квазичастицами – от нескольких от десятков до сотен миллиэлектронвольт (мэВ).

При неупругом рассеянии нейтронов на жидкостях может быть получена информация о различных типах диффузионных движений – прыжковой или вращательной диффузии, или о движении примесных частиц. При рассеянии на жидкостях изменения энергии нейтронов намного меньше, чем при изучении процессов с фононами или магнонами в кристаллах, они находятся в диапазоне до 100 микроэлектронвольт (мкэВ) и кривая рассеяния, как правило, симметрична относительно  $E=0$ . В связи с этим этот тип рассеяния принято называть квазиупругим (в английской терминологии – QNS, quasielastic neutron scattering, в отличие от INS, inelastic neutron scattering). Как интенсивности неупругого и квазиупругого рассеяния могут выглядеть в эксперименте, условно показано на рис. 16.2.1.



**Рис. 16.2.1.** Два типа эффектов при неупругом рассеянии нейтронов. При рассеянии на квазичастицах (фононах, магнонах и др.) происходит обмен определенной энергией между нейтроном и системой рассеивателей (неупругое рассеяние, INS). При взаимодействии нейтрона с термически активированными диффузионными движениями передачи энергии малы и изменяются непрерывным образом (квазиупругое рассеяние, QNS).  $E_0$  и  $E_1$  – энергии нейтрона до и после рассеяния в условных единицах. Внутри кривой QNS показана функция разрешения спектрометра. Масштабы не соблюдены.

Получаемые в экспериментах по неупругому рассеянию сведения напрямую связаны с основными физическими свойствами конденсированных сред, например, дисперсионные соотношения – с силовыми константами

кристалла, фононный спектр с его термодинамическими характеристиками и т.д. Таким образом, неупругое рассеяние нейтронов позволяет решать весьма разнообразные задачи, можно даже сказать, что идеологически они еще более разнообразны, чем в случае дифракции нейтронов.

Поскольку при неупругом рассеянии нейтрона изменяется не только направление его волнового вектора, но и его энергия, то этот процесс описывается дважды дифференциальным сечением рассеяния,  $d^2\sigma/d\Omega dE$ , определяющим вероятность рассеяния в элемент телесного угла  $d\Omega$  и интервал энергий  $dE$ . Из общего квантово-механического рассмотрения следует, что сечение рассеяния напрямую связано с *функциями рассеяния*, часто называемыми законом рассеяния (см. § 4.2):

$$d^2\sigma/d\Omega dE \sim (k_1/k_0) \cdot S(\vec{q}, \omega), \quad (16.2.1)$$

который, в свою очередь, преобразованием Фурье связан с парной пространственно-временной корреляционной функцией  $G(\vec{r}, t)$ :

$$S(\vec{q}, \omega) \sim \iint \exp(i(\vec{q}\vec{r} - \omega t)) \cdot G(\vec{r}, t) d\vec{r} dt. \quad (16.2.2)$$

Предполагается, что изменение энергии нейтрона при рассеянии есть  $\Delta E = \hbar\omega = E_1 - E_0$ , изменение волнового вектора нейтрона характеризуется вектором рассеяния  $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$ , индексами 0 и 1 обозначены величины до и после рассеяния. Введение закона рассеяния, который, на первый взгляд является промежуточной функцией между  $G(\vec{r}, t)$  и сечением рассеяния, удобно тем, что он определяется свойствами и состоянием системы рассеивателей и величинами  $(\vec{q}, \omega)$ , полученными системой от нейтрона. Функция  $G(\vec{r}, t)$  в общем случае является комплексной и физический смысл ее вещественной и мнимой частей существует, но не является простым (см., напр., [Гуревич, Тарасов, 1965]). В классическом пределе, т.е. при пренебрежении мнимой частью  $G(\vec{r}, t)$ , ее удобно представить в виде двух слагаемых  $G(\vec{r}, t) = G_d(\vec{r}, t) + G_s(\vec{r}, t)$ , каждое из которых допускает вероятностную интерпретацию. А именно, можно показать, что  $G_d(\vec{r}, t) d\vec{r}$  есть вероятность того, что частица имеет координаты  $(\vec{r}, t)$ , если какая-то другая частица в момент времени  $t=0$  находилась в точке  $r=0$ , а  $G_s(\vec{r}, t) d\vec{r}$  есть вероятность того, что частица имеет координаты  $(\vec{r}, t)$ , если она в момент времени  $t=0$  находилась в точке  $r=0$ . В Главе 4 (формулы (4.2.14) и (4.2.15)) показано, что полная корреляционная функция  $G(\vec{r}, t)$  связана с когерентной функцией рассеяния, а автокорреляционная функция  $G_s(\vec{r}, t)$  связана с некогерентной функцией рассеяния.

Поскольку корреляционная функция определяется структурными и динамическими свойствами вещества, то она может быть рассчитана в рамках

какой-либо теории или модели, а результат ее фурье-преобразования по формуле (16.2.2) может быть сравнен с измеряемым в эксперименте законом рассеяния. В этом и состоит наиболее общая постановка задачи в исследованиях неупругого рассеяния нейтронов.

Фактически, любой эксперимент по неупругому рассеянию нейтронов организуется так, что начальные энергия и волновой вектор нейтрона известны, а после рассеяния нейтрона на образце они измеряются и определяются их изменения:  $\hbar\omega$  и  $\vec{q}$ . Энергия и волновой вектор связаны стандартным соотношением  $E = (\hbar\vec{k})^2/2m$ , где  $m$  – масса нейтрона, и, соответственно,  $\Delta E = (\hbar^2/2m) \cdot (k_1^2 - k_0^2)$ . Конечно же, для всей системы – нейтрон + образец – выполняются законы сохранения энергии и импульса, т.е.  $\Delta E = \Delta E'$ ,  $\hbar\vec{q} = \hbar\vec{q}'$ , где величины со штрихом относятся к изменению энергии и волнового вектора системы, на которой произошло рассеяние нейтрона.

В случае рассеяния нейтронов на кристалле возможен процесс, при котором обмен кинетической энергией происходит между налетающим нейтроном и всем кристаллом, точно так же, как это происходит с  $\gamma$ -лучами в случае эффекта Мессбауэра. При этом величина переданной энергии очень мала – относительное изменение энергии нейтрона  $\Delta E/E$  составляет по порядку величины  $m/M$ , где  $m$  – масса нейтрона,  $M$  – масса кристалла, т.е. около  $10^{-24}$ , и только такой процесс называется упругим рассеянием. Если же обмен энергией происходит между нейтроном и каким-то отдельным атомом или нейтроном и какой-то коллективной модой колебаний атомов, то  $\Delta E/E$  может быть  $\sim 1$  и именно такое рассеяние называется *неупругим*. Соответственно, введенные выше величины  $\Delta E'$  и  $\vec{q}'$ , относятся либо к отдельному атому, как, например, в случае жидкости, либо к коллективной моде – фонону, магнону и др.

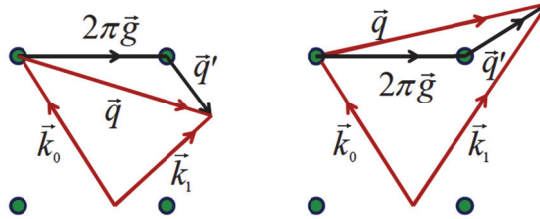
Похожие соображения можно высказать относительно изменения внутреннего состояния кристалла при рассеянии на нем нейтронов. Хотя число взаимодействий рассеивающихся на кристалле нейтронов может составлять  $10^7 \text{ с}^{-1}$ , но оно на много порядков величины меньше числа ядер в образце и неупругое рассеяние не может изменить температурное состояние кристалла на сколь-нибудь значимую величину.

Из общего рассмотрения ядерного рассеяния нейтронов на кристалле следует, что при однофононном рассеянии, т.е. когда рождается или уничтожается один фонон:

$$E_1 - E_0 = \pm \hbar\omega, \quad \vec{k}_1 - \vec{k}_0 = \vec{q} = 2\pi\vec{g} + \vec{q}', \quad (16.2.3)$$

где  $\hbar\omega$  – энергия фонона,  $\vec{q}'$  – волновой вектор фонона,  $\vec{g}$  – вектор обратной решетки кристалла,  $|\vec{k}_0| \neq |\vec{k}_1|$ , знак плюс перед  $\hbar\omega$  относится к передаче энергии от кристалла нейтрону (уничтожению фонона), знак минус – к передаче энергии от нейтрона кристаллу (рождению фонона). Если все вектора в (16.2.3) умножить

на  $\hbar$ , то получится аналогичное соотношение для импульсов. Импульс фонона  $\hbar\vec{q}$  принято называть *квазиимпульсом*, поскольку этой величине не отвечает никакой реальный импульс системы рассеивателей. Вектор  $2\pi\vec{g}$  добавлен в (16.2.3) для удобства рассмотрения вектора  $\vec{q}'$ . Действительно, можно показать, что при рассеянии на кристалле величина передаваемой энергии инвариантна относительно вектора обратной решетки, поэтому удобно перевести вектор  $\vec{q}$ , в первую зону Брюллюэна добавлением подходящего вектора  $2\pi\vec{g}$ . Соотношения между векторами для случаев рождения и уничтожения фонона показаны на рис. 16.2.2.

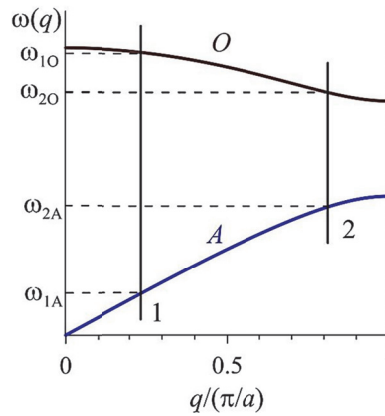


**Рис. 16.2.2.** Векторные диаграммы неупругого рассеяния для случаев потери (слева) и приобретения (справа) нейтроном энергии.  $\vec{k}_0$  и  $\vec{k}_1$  – волновые вектора нейтрона до и после рассеяния,  $\vec{q}$  – вектор рассеяния,  $\vec{g}$  – вектор обратной решетки,  $\vec{q}'$  – волновой вектор фонона, точки – узлы обратной решетки. Для удобства представления длины трансляции в обратной решетке умножены на  $2\pi$ .

Формулы (16.2.3) в сочетании с законом сохранения энергии  $\hbar\omega = (\hbar^2/2m) \cdot (k_1^2 - k_0^2)$  позволяют найти дисперсионные соотношения  $\omega(\vec{q}')$  для любых величин и направлений вектора  $\vec{q}'$ , если при известных  $E_0$  и  $\vec{k}_0$  измерены  $E_1$  и  $\vec{k}_1$ . Иллюстрация того, как эта процедура может быть реализована (возможны и другие варианты), приведена на рис. 16.2.3. Фактически для нахождения дисперсионных соотношений вполне достаточно геометрического анализа процесса рассеяния, определения сечения рассеяния (интенсивности рассеяния) не требуется. Измерение  $\omega(\vec{q}')$  в некотором смысле эквивалентно нахождению параметров элементарной ячейки кристалла и ее симметрии по положениям дифракционных пиков в обратном пространстве. В этом случае также достаточно геометрического анализа, измерений интенсивности пиков при этом не требуется.

В неупругом рассеянии нейтронов специфическим образом проявляется изотопическая и спиновая некогерентность при взаимодействии нейтрона со средой. Если в дифракционных или малоугловых экспериментах некогерентное рассеяние проявляется как затрудняющий извлечение полезной информации фон, то в неупругом рассеянии оно, наоборот, зачастую представляет собой важный

источник информации. Случайность в расположении изотопов в структуре кристалла и во взаимном направлении спинов нейтрона и ядра нарушает фазовые соотношения между волнами, рассеянными на разных ядрах. Выполнение соответствующей процедуры усреднения приводит к разделению полного сечения рассеяния на когерентное и некогерентное:  $\sigma_{\text{tot}} = \sigma_{\text{coh}} + \sigma_{\text{inc}}$ . Это утверждение справедливо для любого типа рассеяния, в том числе и для неупругого. Естественно, что коллективные эффекты, в частности, взаимодействие с квазичастицами, наиболее ярко проявляются в когерентном рассеянии. Однако, хотя некогерентное рассеяние, как принято считать, происходит локально, тем не менее, выявить коллективные эффекты с его помощью возможно. Обусловлено это той же причиной, вследствие которой возможно упругое некогерентное рассеяние, а именно, потому, что любой рассеивающий центр в той или иной степени связан со всем коллективом окружающих его других центров. В частности, именно с помощью некогерентного рассеяния наиболее эффективно определяются некоторые интегральные характеристики динамики атомов, например, фононный спектр кристалла.



**Рис. 16.2.3.** Измерение дисперсионных кривых при сканировании вдоль  $q = \text{const}$ . Показаны две кривые, соответствующие акустическим ( $A$ ) и оптическим ( $O$ ) колебаниям. Сканирование происходит вдоль сплошных линий 1 и 2. При их пересечении с дисперсионными кривыми возникают максимумы неупругого рассеяния, соответствующие частотам фононов, указанным на вертикальной оси. Для определения всей дисперсионной кривой необходимо выполнить измерения в интервале  $0 \leq q \leq \pi/a$ , где  $a$  — период кристаллической решетки вдоль определенного направления.

С практической точки зрения важным моментом является абсолютная величина сечений различных вариантов неупругого рассеяния, от которой зависит при каких условиях эксперимент может быть реализован. В общем случае, неупругое рассеяние оказывается заметно менее интенсивным, чем упругое. Например, для случая одноатомного кристалла и процесса рождения одного

фонона отношение некогерентных сечений неупругого,  $\sigma_{in}$ , и упругого,  $\sigma_{el}$ , рассеяния есть [Ахиезер, Померанчук, 1950]:

$$\sigma_{in}/\sigma_{el} \approx (m/M) \cdot (E/\theta_D)^3, \quad (16.2.4)$$

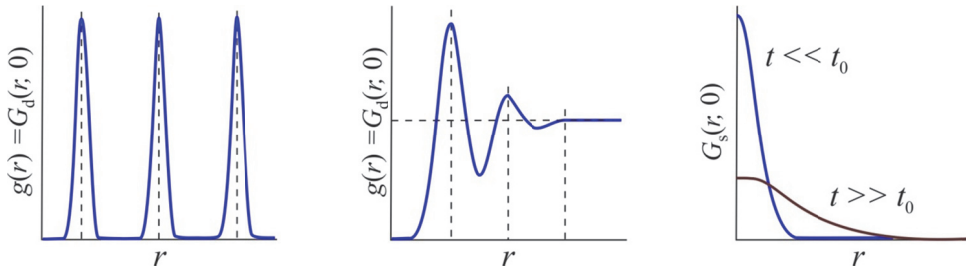
где  $m$  и  $M$  – массы нейтрона и ядра,  $E$  – энергия нейтрона,  $\theta_D$  – температура Дебая кристалла (в энергетических единицах). Особенности этой формулы являются наличие массы ядра в знаменателе (чем тяжелее ядра, тем труднее возбудить их колебания в кристалле) и довольно резкая зависимость от энергии нейтрона. Оценим отношение  $\sigma_{in}/\sigma_{el}$  для рассеяния на ванадии, для которого  $M \approx 51$ ,  $\theta_D \approx 390 \text{ K} = 0.033 \text{ эВ}$ . Из (16.2.4) получаем, что для  $E = 0.025 \text{ эВ}$   $\sigma_{in}/\sigma_{el} \approx 0.009$ . Когерентное рассеяние на ванадии практически отсутствует и, следовательно, интенсивность неупругого рассеяния в этом случае составляет только около 1% от полной интенсивности. Примерно такая же ситуация и для других видов неупругого рассеяния, и по этой причине его измерение, как правило, требует заметно большего времени и проводится на образцах намного большего объема, чем в случае дифракционных экспериментов.

### § 16.3. Основные понятия и формулы

Формализм описания неупругого рассеяния, ядерного и магнитного, подробно изложен в главах 4 – 6. Здесь мы приведем некоторые формулы, необходимые для последующего изложения методики эксперимента.

Формулы (16.2.1) и (16.2.2) являются основой для анализа неупругого рассеяния нейтронов. В § 4.2. было показано, что для конкретного рассмотрения функцию  $G(\vec{r}, t)$  удобно разделить на автокорреляционную функцию,  $G_s(\vec{r}, t)$  и парную корреляционную функцию,  $G_d(\vec{r}, t)$ . Поведение функций  $G_s$  и  $G_d$  в зависимости от времени определяется динамикой системы рассеивателей. В пределе  $t=0$  их вид соответствует мгновенному снимку распределения вероятностей найти ту же самую или другую частицу в точке  $r$ , если какая-то частица находится в точке  $r=0$ . В этом случае  $G_s(\vec{r}, 0) = \delta(r)$ ,  $G_d(\vec{r}, 0) = g(\vec{r})$ , где  $g(\vec{r})$  – статическая корреляционная функция, эквивалентная пространственной парной корреляционной функции, обсуждавшейся в Главах 13 и 14 применительно к анализу дифракции и малоуглового рассеяния нейтронов. Как выглядит  $g(\vec{r})$  для кристалла и жидкости показано на рис. 16.3.1, где, кроме того, показано поведение автокорреляционной функции жидкости при малых и больших временах. На основе модельных предположений о функциях  $G_d(\vec{r}, t)$  и  $G_s(\vec{r}, t)$  может быть решена прямая задача, т.е. с использованием формул (16.2.1) и (16.2.2) могут быть рассчитаны закон и сечение рассеяния, а затем выполнено их сравнение с экспериментом. Еще один важный момент в использовании

корреляционных функций для анализа неупругого рассеяния нейтронов – возможность применения этого метода к рассеивателям разной природы.



**Рис. 16.3.1.** Парная корреляционная функция при  $t=0$  для кристалла (слева) и жидкости (в середине). Поведение автокорреляционной функции жидкости в пределе малых и больших времен (справа). Масштабы не соблюдены.

Из общего квантово-механического рассмотрения (см. §4.2) следует, что разделение полной корреляционной функции на два слагаемых, позволяет переписать формулы (16.2.1) и (16.2.2) следующим образом:

$$\left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE} \right)_{\text{coh}} \sim (k_1/k_0) \cdot \iint \exp(i(\vec{q}\vec{r} - \omega t)) \cdot G(\vec{r}, t) d\vec{r} dt, \quad (16.3.1)$$

$$\left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE} \right)_{\text{inc}} \sim (k_1/k_0) \cdot \iint \exp(i(\vec{q}\vec{r} - \omega t)) \cdot G_s(\vec{r}, t) d\vec{r} dt. \quad (16.3.2)$$

Т.е. когерентное рассеяние связано преобразованием Фурье с полной корреляционной функцией  $G(\vec{r}, t)$ , тогда как некогерентное рассеяние – с автокорреляционной функцией. Согласно свойствам фурье-преобразования особенности поведения функций  $G(\vec{r}, t)$  и  $G_s(\vec{r}, t)$  при малых значениях переменных  $\vec{r}$  и  $t$  проявляются в поведении сечений рассеяния при больших значениях переменных  $(\vec{q}, \omega)$  и наоборот. С некоторой долей условности можно сказать, что характерные расстояние  $r_0$  и время  $t_0$  в ансамбле центров в сечении рассеяния нейтронов на этом ансамбле проявятся при  $q_0 \approx 2\pi/r_0$  и  $\omega_0 \approx 2\pi/t_0$ . Эти соотношения позволяют связать диапазоны изменения переменных. Например, на трехосном спектрометре IN8 (ILL) возможны эксперименты, в которых передача энергии происходит в диапазоне  $\Delta E = (0.001 - 0.1)$  эВ, что соответствует диапазону частот  $\omega = \Delta E/\hbar = (1.5 - 150) \cdot 10^{12}$  Гц  $= (1.5 - 150)$  ТГц ( $\hbar = 6.58 \cdot 10^{-16}$  эВ·с). Это означает, что с помощью неупругого рассеяния нейтронов на IN8 изучаются процессы в системе рассеивателей, происходящие с характерными временами  $t = 2\pi/\omega \approx (4 - 400) \cdot 10^{-14}$  с.

Выделение автокорреляционной функции  $G_s(\vec{r}, t)$  из полной функции  $G(\vec{r}, t)$  оказалось очень эффективным приемом для модельных расчетов дважды дифференциального сечения рассеяния. Связано это с тем, что моделирование



$G(\vec{r}, t)$  существенно сложнее, чем  $G_s(\vec{r}, t)$  и, кроме того, в некоторых случаях возможна аппроксимация полной функции через  $G_s(\vec{r}, t)$ , а именно:

$$G(\vec{r}, t) \approx G_s(\vec{r}, t) + \int g(\vec{r}') \cdot G_s(\vec{r} - \vec{r}', t) d\vec{r}', \quad (16.3.3)$$

где  $g(\vec{r})$  – статическая корреляционная функция. Это приближение, введенное в работе [Vineyard, 1958] и известное как приближение свертки, поскольку интеграл в (16.3.3) представляет собой свертку функций  $g(\vec{r})$  и  $G_s(\vec{r}, t)$ , используется при анализе рассеяния на жидкостях и растворах.

Один из вариантов моделирования функции  $G_s(\vec{r}, t)$ , а посредством (16.3.3) и  $G(\vec{r}, t)$ , ее представление в виде гауссиана по координате и с шириной, зависящей от времени:

$$G(\vec{r}, t) = [2\pi\Gamma(t)]^{-1/2} \cdot \exp[-r^2/2\Gamma(t)], \quad (16.3.4)$$

где  $\Gamma(t)$ , называемая “ширинной функцией”, является дисперсией  $G_s(r, t)$ . Варианты функции  $\Gamma(t)$  для ряда динамических моделей можно найти в [Гуревич, Тарасов, 1965], например, в классической модели диффузии используется  $\Gamma(t) \sim t$ .

В статическом приближении, т.е. при  $t \rightarrow 0$ ,  $G(\vec{r}, 0) = G_s(\vec{r}, 0) + G_d(\vec{r}, 0) = \delta(r) + g(\vec{r})$  и (16.3.1) переходит в

$$\begin{aligned} (d^2\sigma/d\Omega dE)_{\text{coh}} &\sim (k_1/k_0) \cdot \iint \exp(i(\vec{q}\vec{r} - \omega t)) \cdot [\delta(r) + g(\vec{r})] d\vec{r} dt \sim \\ &\sim \delta(\omega) \cdot [1 + \int g(\vec{r}) d\vec{r}]. \end{aligned} \quad (16.3.5)$$

Эта формула может быть использована в исследованиях структуры жидкостей.

Поведение корреляционных функций при  $t \rightarrow \infty$ , как следует из свойств преобразования Фурье, определяет процесс с нулевой передачей энергии. Но в системах с диффузией, например, в жидкости, при больших временах функция  $G_s(r, t) \rightarrow 0$  и, следовательно, рассеяние с нулевой передачей энергии, т.е. упругое рассеяние, в них невозможно.

### 16.3.1. Прямая и обратная задачи в неупругом рассеянии

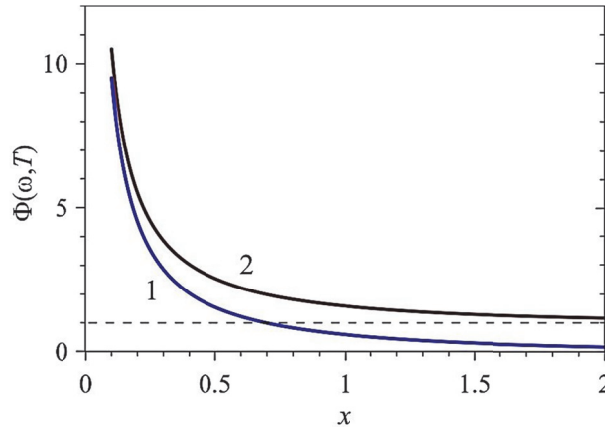
В общем случае экспериментальное измерение сечений когерентного и некогерентного неупругого рассеяния не позволяет однозначно определить корреляционные функции  $G_d$  и  $G_s$ , поскольку для этого необходимо решить интегральные уравнения (16.3.1) и (16.3.2). Поэтому, как правило, решается прямая задача, т.е. рассчитываются эффекты рассеяния по структурным и динамическим характеристикам объекта, заданным на основе каких-либо моделей. Примером такого подхода является расчет и сравнение с экспериментом шириной функции, фигурирующей в (16.3.4) для простых жидкостей и жидкостей с примесями.

Однако при определении некоторых динамических характеристик кристалла может быть однозначно решена и обратная задача. Выше уже было указано, что измерение положений максимумов неупругого рассеяния в пространстве  $(\vec{q}, \omega)$  и использование законов сохранения позволяет определять дисперсионные соотношения  $\omega(\vec{q})$ . Измерение большого числа кривых  $\omega(\vec{q})$  дает возможность получить функцию  $g(\omega)$  – плотность нормальных мод, т.е. число нормальных мод с частотой  $\omega$  в интервале частот  $d\omega$ , которую принято называть фононной плотностью уровней или плотностью фононных состояний. Для этого необходимо выполнить интегрирование в обратном пространстве вдоль поверхностей постоянной энергии.

В некоторых случаях функцию  $g(\omega)$  можно непосредственно измерить в нейтронном эксперименте по неупругому некогерентному рассеянию. Действительно, для одноатомных кубических решеток Браве справедливо соотношение [Гуревич, Тарасов, 1965]:

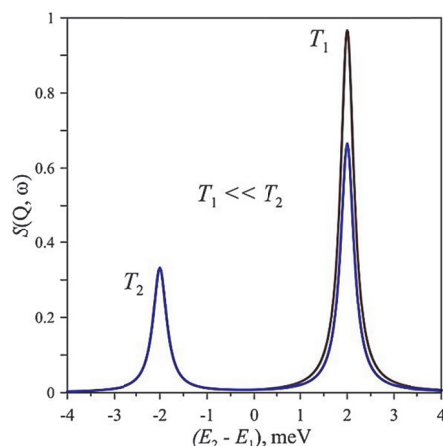
$$(d^2\sigma/d\Omega d\omega)_{\text{inc}} \sim b_{\text{in}}^2 \cdot \Phi(\omega, T)^{\pm} \cdot g(\omega), \quad (16.3.6)$$

где  $b_{\text{in}}$  – некогерентная длина рассеяния,  $\Phi(\omega, T)$  – температурный фактор, знаки  $\pm$  относятся к процессу с рождением или уничтожением фонона,  $\Phi(\omega, T)^+ = \exp(\hbar\omega/kT)/[\exp(\hbar\omega/kT) - 1]$ ,  $\Phi(\omega, T)^- = 1/[\exp(\hbar\omega/kT) - 1]$ . Для выделения однофононного некогерентного рассеяния необходимо использовать образцы, у которых некогерентная компонента рассеяния существенно превышает когерентную, кроме того, надо учитывать поправки на многофононное рассеяние. Поведение температурных факторов показано на рис. 16.3.2. Видно, что при низких температурах (большое отношение  $\hbar\omega/kT$ ) вероятности рождения или уничтожения фонона намного меньше, чем при высоких.

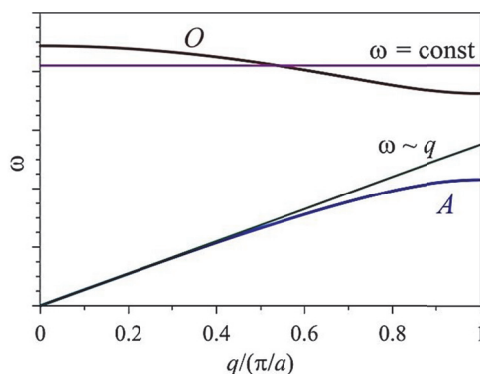


**Рис. 16.3.2.** Температурные факторы однофононного рассеяния в зависимости от  $x = \hbar\omega/kT$ . Кривые 1 и 2 соответствуют уничтожению и рождению фонона.

Различие в температурных факторах при рождении и уничтожении фонона связаны с тем, что сечения рассеяния этих процессов должны соответствовать статистическому условию *детального баланса* (формула (4.4.10)) для системы, находящейся в состоянии термодинамического равновесия, поскольку являются сечениями прямого и обратного процессов. Из поведения  $\Phi(\omega, T)^\pm$  следует, что при очень больших температурах эти сечения одинаковы, тогда как при  $T \rightarrow 0$  рассеяние с  $\hbar\omega < 0$  практически отсутствует (рис. 16.3.3).



**Рис. 16.3.3.** Вид закона рассеяния для системы с одним возможным возбужденным состоянием ( $E_1 - E_0 = 2$  мэВ) для двух температур. Для малой температуры ( $T_1$ ) процессы с уничтожением фонона отсутствуют.



**Рис. 16.3.4.** Кривые дисперсии акустических ( $A$ ) и оптических ( $O$ ) фононов и их аппроксимация линейной ( $\omega \sim q$ , модель Дебая) и постоянной ( $\omega = \text{const}$ , модель Эйнштейна) функциями.

Измеренная функция  $g(\omega)$  может быть сравнена с расчетами по динамическим моделям Дебая, Эйнштейна или Борна-Кармана [Киттель, 1978]. Известно, что модель Дебая, в которой  $\omega(q) \sim q$  и  $g(\omega) \sim \omega^2$ , хорошо воспроизводит акустические ветви дисперсионных кривых при малых  $q$  и  $g(\omega)$

при малых  $\omega$ . Модель Эйнштейна, в которой  $\omega(q) = \text{const}$  и  $g(\omega) \sim \delta(\omega - \omega_0)$ , иногда годится для описания оптических ветвей дисперсионных кривых (рис. 16.3.4). В более строгой модели Борна-Кармана вводятся реалистические взаимодействия не только между ближайшими, но и со вторыми, третьими и т.д. соседями в трехмерной структуре кристалла и с ее помощью удается достаточно точно описать не только спектр фононов, но и кривые дисперсии.

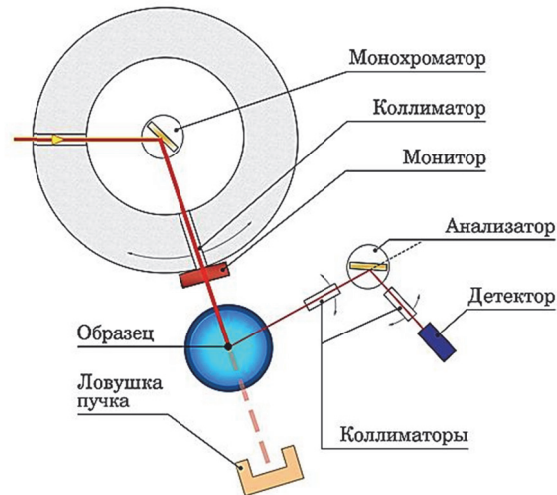
### § 16.4. Спектрометры неупругого рассеяния

В экспериментах на спектрометрах неупругого рассеяния в обязательном порядке необходимо определить энергию нейтрона после взаимодействия с образцом. Исключение представляет спин-эхо спектрометр, в котором сразу определяется разница  $E_1 - E_0$  (см. раздел 7.2.3). Для выполнения этой процедуры разработано несколько способов.

На стационарных источниках нейтронов классическим вариантом является уже упоминавшийся выше трехосный спектрометр, на котором используется исходный монохроматический пучок нейтронов, а энергия нейтронов, рассеянных на образце, определяется с помощью кристалла-анализатора. Другой возможный вариант на стационарных источниках нейтронов – использование метода времени пролета в “прямой” геометрии, т.е. с прерывателем-монохроматором перед образцом. На импульсных источниках нейтронов вариантов также два – «прямая» или «обратная» геометрия. Особым методом изучения неупругого рассеяния является спин-эхо спектрометрия. Далее кратко рассмотрены перечисленные пять вариантов. Каждый из типов спектрометров имеет свою область эффективного применения, которая, в основном, определяется рабочим диапазоном начальной энергии,  $E_0$ , доступным диапазоном передаваемой энергии,  $E_1 - E_0 = \pm \hbar\omega$ , и уровнем энергетического разрешения  $\Delta E/E$ .

#### 16.4.1. Трехосный спектрометр

Классическая схема трехосного спектрометра неупругого рассеяния нейтронов была предложена и реализована в конце 1950-х годов Б.Брокхаузом на реакторе в Chalk River (Канада) [Брокхауз, 1995]. Она оказалась настолько универсальной и эффективной, что за прошедшие десятилетия не претерпела принципиальных изменений. Основными функциональными узлами спектрометра (рис. 16.4.1) являются монохроматор, место образца, анализатор и детектор. Его название, в английской аббревиатуре «TAS – triple- (или three)-axis spectrometer», очевидно связано с возможностью вращения трех монокристаллов – монохроматора, образца и анализатора – вокруг вертикальных осей для настройки параметров эксперимента. Подробное описание этого типа спектрометров с многочисленными примерами его использования дано в монографии [Shirane et al., 2002].



**Рис. 16.4.1.** Схема классического трехосного нейтронного спектрометра неупругого рассеяния нейтронов. Помещенные в массивную защиту кристалл-монохроматор и коллиматор формируют пучок нейтронов с длиной волны  $\lambda_0$ , которая определяется углом отражения от кристалла. Энергия нейтронов, регистрируемых детектором, фиксируется выбором угла отражения от кристалла-анализатора. Длина и направление вектора рассеяния определяются углом рассеяния на образце и изменением энергии нейтрона.

С помощью монохроматора из максвелловского спектра нейтронов от реактора выделяется узкая (монокроматическая) линия с шириной на уровне  $\Delta E_0/E_0 \sim 0.01$ . В [Shirane et al., 2002] перечислены несколько материалов, монокристаллы которых подходят как монохроматоры для ТАС. В их числе металлы (Fe, Zn, Nb, Cu, Al, Pb), пиролитический графит (PG), а также Si и Ge. На современных спектрометрах, как правило, есть возможность выбора подходящего для конкретной задачи монохроматора, который определяется желаемой величиной  $E_0$ , отражательной способностью, уровнем некогерентного фона, интенсивностью высших порядков отражения и др. Основная тенденция в улучшении характеристик этого узла – использование фокусирующих (в одной или в двух плоскостях) монохроматоров. Например, на уже упомянутом спектрометре IN8 (ILL) можно выбирать между PG(002), Cu(200) и Si(111) монохроматорами с двойной фокусировкой (в скобках указана отражающая плоскость). Подробнее о монохроматизации пучка нейтронов с помощью кристаллов см. § 11.4. Для анализа энергии рассеянного пучка используются такие же кристаллы, как для монохроматизации, но фокусировка осуществляется только в вертикальной плоскости.

Основным достоинством трехосного спектрометра считается его гибкость в выборе варианта сканирования зоны Бриллюэна. Именно спектрометр этого типа обеспечивает возможность практически непрерывного сканирования зоны Бриллюэна вдоль заданного симметричного направления в кристалле, что

необходимо при измерении дисперсионных кривых. Как правило, эксперимент проводится с использованием двух методик: при фиксированной величине вектора рассеяния (метод постоянного  $q$ ) или при фиксированной величине передаваемой энергии (метод постоянного  $\omega$ ). Описания так называемых *кинематических схем*, т.е. способов изменения экспериментальных переменных (начальной и конечной энергии, величин и направлений волновых векторов) для обоих методов приведены в [Алексеев, Менушенков, 2012] и [Shirane et al., 2002].

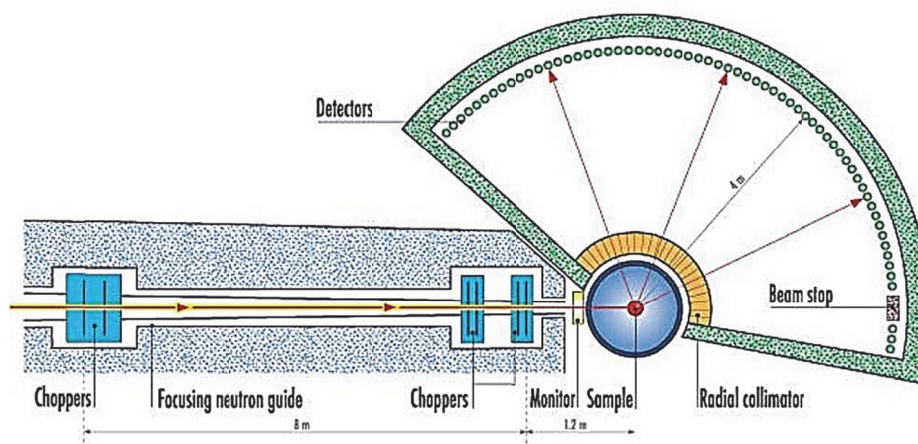
На всех современных стационарных источниках нейтронов, как правило, действует не один, а несколько трехосных спектрометров. Например, на реакторе в ILL (Франция) эксперименты ведутся на шести TAS. В основном, различия между ними связаны с диапазоном, в котором можно изменять энергию первичного пучка. Это достигается расположением спектрометра на холодном ( $E_{0, \max} \sim 40$  мэВ), теплом ( $E_{0, \max} \sim 100$  мэВ) или горячем ( $E_{0, \max} \sim 500$  мэВ) источниках. Кроме того, на некоторых TAS имеется возможность работы с поляризованным пучком нейтронов.

Функция разрешения TAS в общем случае представляет собой 4-мерный эллипсоид в пространстве переменных  $(\vec{q}, \omega)$ , хотя, как правило, компонента импульса,  $q_z$ , в перпендикулярном плоскости рассеяния направлении не связана с остальными переменными и можно рассматривать 3-мерный эллипсоид с осями  $(q_x, q_y, \omega)$ . Так же как на дифрактометрах, на TAS могут быть реализованы условия фокусировки, позволяющие заметно улучшить их разрешающую способность.

#### 16.4.2. Спектрометр по времени пролета «прямой» геометрии

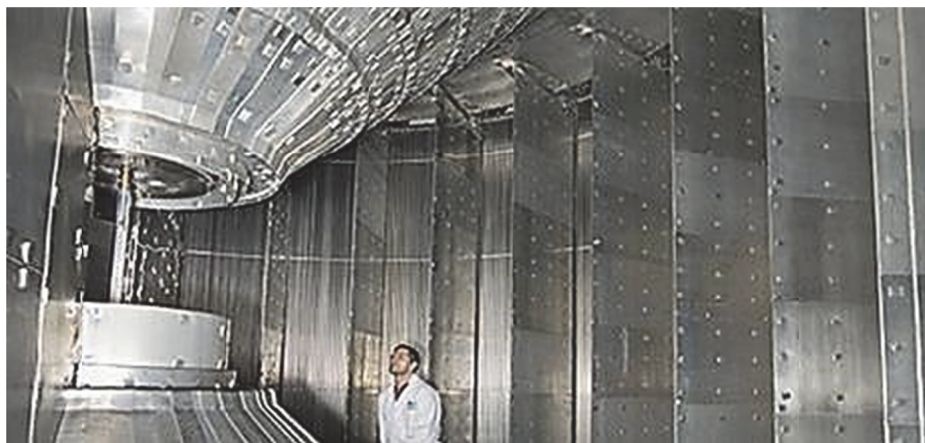
Первые спектрометры неупругого рассеяния нейтронов с использованием метода времени пролета (TOF-спектрометры) появились примерно в одно время с TAS в середине 1950-х годов. В сравнении с TAS они отличались более простой конструкцией, большей гибкостью в выборе начальной энергии нейтронов и лучшей разрешающей способностью. Поначалу TOF-спектрометры предназначались для изучения эффектов, связанных с некогерентным рассеянием, но затем выяснилось, что некоторые варианты их конструкции позволяют достаточно эффективно получать информацию о когерентных процессах. Важным обстоятельством оказалось также то, что схема прямой геометрии может быть использована как на стационарных, так и на импульсных источниках нейтронов.

Схема одного из многочисленных действующих TOF-спектрометров прямой геометрии показана на рис. 16.4.2 (IN5, ILL). Система прерывателей создает импульсы монохроматических нейтронов, многодетекторная система регистрации обеспечивает анализ энергии рассеянных на образце нейтронов по времени пролета в широком интервале векторов рассеяния. Аналогичная схема используется на импульсном источнике, но роль одного из прерывателей выполняет сам источник нейтронов.



**Рис. 16.4.2.** Схема нейтронного спектрометра «прямой» геометрии (IN5, ILL). Прерывателями создаются импульсы монохроматических нейтронов с энергией  $E_0$ . Энергия рассеянных на образце нейтронов определяется по времени пролета расстояния между образцом и детекторами. Направление вектора рассеяния определяются углом рассеяния на образце.

Характерная особенность современных TOF-спектрометров прямой геометрии – использование 2D ПЧД большой площади (рис. 16.4.3), что обеспечивает практически непрерывное сканирование больших объемов обратного пространства. TOF-спектрометры могут располагаться на холодных или теплых пучках нейтронов. Например, на спектрометре LET (ISIS) используются нейтроны с начальной энергией (0.5 – 30) мэВ с разрешением по энергии вплоть до 0.02 мэВ. А на спектрометре Merlin (ISIS) начальная энергии может быть выбрана из диапазона (7 – 2000) мэВ.



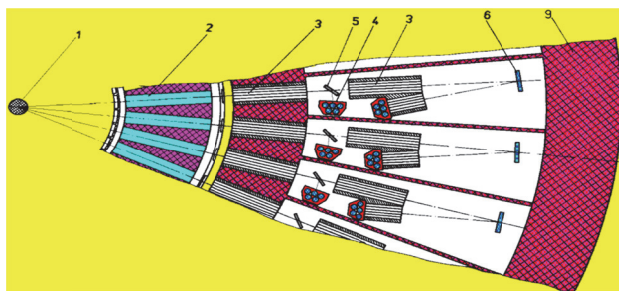
**Рис. 16.4.3.** Детекторная система TOF-спектрометра прямой геометрии LET (ISIS). Система состоит из 440 позиционно-чувствительных  $^3\text{He}$ -счетчиков, покрывающих площадь 15 м<sup>2</sup>.

В результате создания спектрометров неупругого рассеяния, оборудованных ПЧД с большой площадью (IN5, LET, Merlin и др.), появилась возможность измерения функции рассеяния в 4-мерном пространстве,  $S(\vec{q}, \omega)$ , получая, таким образом, исчерпывающую информацию о динамике изучаемого объекта.

### 16.4.3. Спектрометр по времени пролета «обратной» геометрии

TOF-спектрометры обратной геометрии широко представлены на импульсных источниках нейтронов. Их особенностью является использование всего максвелловского спектра нейтронов от источника, что обеспечивает высокую светосилу этого типа спектрометров. Термин «обратная геометрия» связан с тем, что монохроматизируется рассеянный, а не первичный пучок, как на спектрометрах прямой геометрии.

Используется несколько вариантов монохроматизации. Наиболее простой состоит в пропускании рассеянного пучка сквозь Ве-фильтр (§ 11.6). Энергия прошедших сквозь фильтр нейтронов соответствует первому брэгговскому скачку ( $E \approx 5.12$  мэВ) с шириной полосы пропускания  $\Delta E \approx 2.5$  мэВ. Разрешение спектрометра с Ве-фильтром можно улучшить в несколько раз, используя дополнительный анализ энергии прошедших сквозь фильтр нейтронов с помощью монокристаллов-анализаторов.



**Рис. 16.4.4.** Фрагмент системы анализа энергии и детекторов TOF-спектрометра обратной геометрии NERA (ИБР-2). Цифрами обозначены: 1 – образец, 2 – Ве-фильтры, 3 – коллиматоры, 4 –  $^3\text{He}$ -детекторы, 5 – PG-анализаторы, 6 – анализаторы на монокристаллах, 9 – защита спектрометра.

Пример того, как это может быть сделано, приведен на рис. 16.4.4. Рассеянные на образце нейтроны после прохождения через Ве-фильтр отражаются от монокристаллов и только затем регистрируются детекторами. В разделе 13.4.3 было показано, что при дифракции на кристалле геометрический вклад в функцию разрешения убывает при увеличении угла Брэгга как  $1/\text{tg}(\theta)$ . На спектрометре NERA в одном из вариантов постановки эксперимента анализ энергии выполняется с помощью отражения от монокристалла (PG(002)) при



$\theta = 86^\circ$ . Это позволяет сузить функцию разрешения до  $\sim 0.05$  мэВ, что дает возможность изучать эффекты квазиупругого рассеяния. На импульсных источниках типа Spallation (с коротким импульсом) этот метод улучшения разрешающей способности («обратное» отражение) позволяет уменьшить ширину функцию разрешения вплоть до  $\sim 0.002$  мэВ.

#### 16.4.4. Спин-эхо спектрометр

Величина  $0.002$  мэВ ( $2$  мкэВ) считается близкой к предельной для ширины функции разрешения TOF-спектрометра обратной геометрии. Используя соотношение  $t_0 \approx h/E_0$ , получаем ( $h = 4.136 \cdot 10^{-15}$  эВ·с) неопределенность во времени около  $2 \cdot 10^{-9}$  с. Из этой оценки следует, что на спектрометре обратной геометрии, в принципе, можно изучать процессы с характерными временами  $t_0 \sim 10^{-9}$  с и меньше. В середине 1970-х годов был предложен новый метод анализа квазиупругого рассеяния – *спин-эхо спектроскопия* с разрешением по энергии примерно в  $100$  раз лучше, который позволил, таким образом, изучать процессы с  $t_0 \sim 10^{-7}$  с и меньше [Mezei, 1979, 1982].

В методе спинового эха используется явление ларморовской прецессии магнитного момента нейтрона вокруг вектора внешнего магнитного поля (ее теория изложена в § 7.2). Принцип метода рассмотрен в разделе 7.2.2 (рис. 7.7.2). Из математического анализа этого процесса следует, что корректная интерпретация изучаемого эффекта изменения поляризации возможна, если реализуется линейная связь между изменениями угла прецессии и энергии нейтрона. Можно показать, что в первом приближении связь будет линейной, если разброс по энергиям в первичном пучке не превышает  $15\%$ . Этот фактор определяет относительно большую светосилу метода.

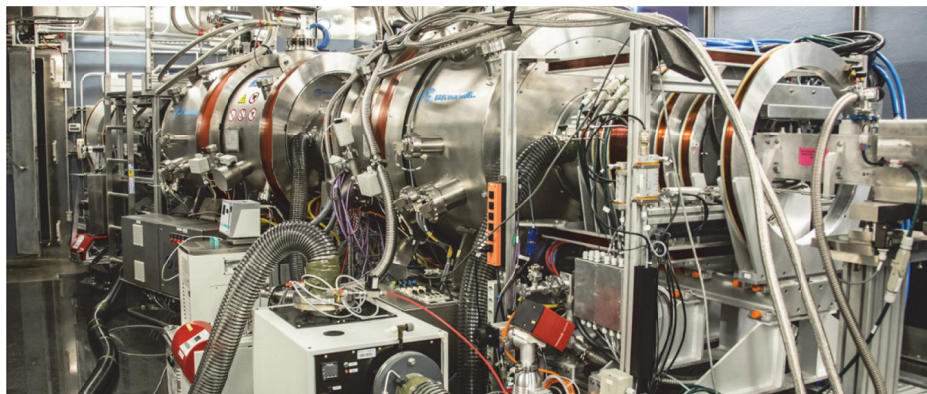


Рис. 16.4.5. Спин-эхо спектрометр BL-15 на импульсном источнике нейтронов SNS (США).

Его практическая реализация оказалась непростой. Спин-эхо спектрометр представляет собой весьма сложную и дорогую установку (рис. 16.4.5). Тем не

менее, уже в 1979 г. в ILL первый спектрометр был создан, после чего фактически во всех ведущих нейтронных центрах, как на стационарных, так и на импульсных источниках появились спин-эхо спектрометры, хотя их число заметно меньше, чем число спектрометров неупругого рассеяния других типов.

Последующее развитие исходной идеи позволило создать спин-эхо спектрометры, на которых возможно изучение процессов с характерными временами вплоть до нескольких микросекунд, т.е. почти в  $10^3$  раз расширить диапазон времен, достижимый на спектрометрах обратного рассеяния. Именно с такими характерными временами происходят некоторые типы диффузионных движений, тепловые флуктуации формы полимеров и больших биологических молекул (глобулярных белков, липидных мембран), движения магнитных моментов в спиновых стеклах и др.

Примеры исследований, выполненных с помощью нейтронной спектроскопии высокого разрешения – на спектрометрах обратного рассеяния и спин-эхо, приведены в обзоре [Monkenbusch, Richter, 2007].

### § 16.5. Задачи, решаемые на спектрометрах неупругого рассеяния

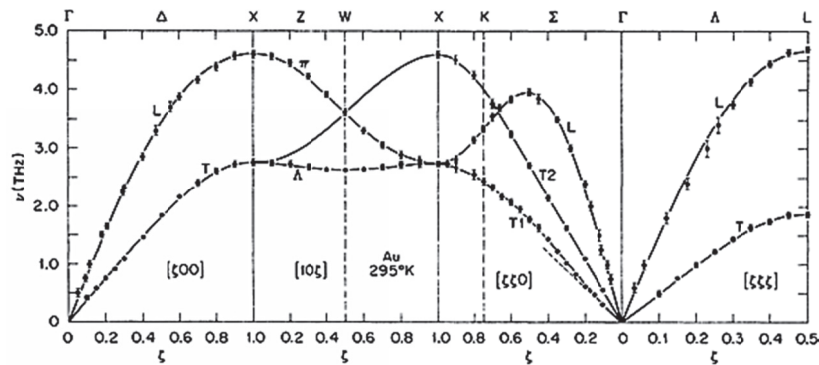
Основные области применения неупругого рассеяния в физике конденсированного состояния обсуждались в главах 5 и 6. Здесь мы отметим дополнительно некоторые задачи, отражающие особенности методики эксперимента.

Список задач, решение которых возможно на спектрометрах неупругого рассеяния очень широк и постоянно пополняется, что естественным образом связано с постепенным улучшением характеристик спектрометров. Разнообразие задач, прежде всего, обусловлено очень широкими пределами по переданным энергиям и импульсам, в которых возможно изучение эффектов неупругого рассеяния. Совокупность действовавших к началу 2020-х годов в современных нейтронных центрах спектрометров неупругого рассеяния обеспечивала возможность работы в пределах  $\sim(0.02 - 60) \text{ \AA}^{-1}$  по вектору рассеяния ( $>3$  порядков) и  $\sim(5 \cdot 10^{-6} - 5 \cdot 10^3) \text{ мЭВ}$  по переданной энергии (8 порядков).

С помощью неупругого рассеяния нейтронов была получена детальная информация о межатомных потенциалах, фазовых переходах, критических явлениях, динамике жидкостей, внутримолекулярной динамике, некоторых специфических взаимодействиях типа электрон-фононного. Магнитное неупругое рассеяние нейтронов проявило себя как уникальный метод изучения спиновых волн, обменных взаимодействий, эффектов электрического поля, магнитных флуктуаций. Эти результаты позволили значительно продвинуться в понимании многих проблем физики конденсированных сред.

Пожалуй, основным типом экспериментов, проводимых на трехосных спектрометрах, является измерение кривых дисперсии фононов и магнонов. Как правило, решается прямая задача, т.е. измеряются дисперсионные кривые,

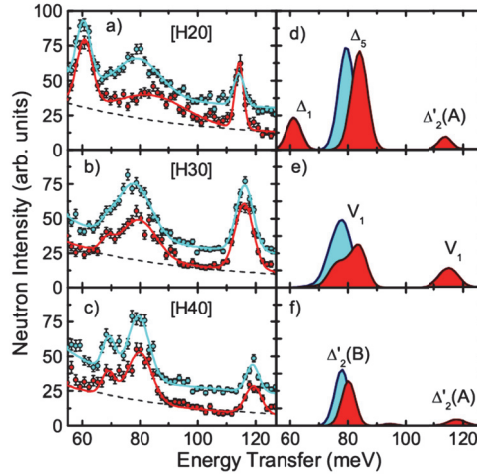
которые затем сравниваются с расчетами по какой-либо модели. Для проведения эксперимента нужен монокристалл достаточно больших размеров ( $\sim 1 \text{ см}^3$ ). Если структура кристалла имеет высокую симметрию, то обычно измерения кривых дисперсии проводятся только вдоль основных направлений в кристаллической решетке, типа  $[100]$ ,  $[110]$  и  $[111]$ . Диапазон требуемых энергий зависит от конкретной структуры кристалла. Если все атомы относительно тяжелые, то максимальные  $\hbar\omega$  составляют несколько десятков мэВ. Например, в меди, которая является тестовым образцом для ТАС, максимальные энергии фононов не превышают 40 мэВ. Расчеты кривых дисперсии ведутся по модели Борна-Кармана с учетом взаимодействия между несколькими ближайшими соседями. В качестве иллюстрации хорошего соответствия нейтронных экспериментальных данных и расчета по модели Борна-Кармана на рис. 16.5.1 показаны кривые дисперсии для золота, измеренные в работе [Lynn et al., 1973]. В случае сложных структур, например, таких как  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ , энергия фононов оптических ветвей кривых дисперсии достигает 80 мэВ и больше. При наличии в структуре легких атомов требуется расширять диапазон вплоть до 100 – 150 мэВ.



**Рис. 16.5.1.** Кривые дисперсии фононов для золота, измеренные (точки) при комнатной температуре в некоторых направлениях высокой симметрии кристалла. Сплошные кривые – расчет по модели Борна-Кармана с учетом взаимодействия между несколькими ближайшими соседями, пунктирная линия – скорость звука в направлении  $[110]$ . Буквами Т (Т1, Т2) и L обозначены поперечные и продольная ветви возбуждений, в направлении  $[100]$  две поперечные ветви совпадают (вырождены). Буквами  $\Gamma$ ,  $\Delta$ , X и т.д. обозначены особые точки и направления в зоне Бриллюэна,  $\zeta = aq/2\pi$  – приведенный волновой вектор.

Нормальные моды, относящиеся к периодическому изменению ориентаций магнитных моментов атомов в магнитоупорядоченных кристаллах, называются спиновыми волнами. Их квантование приводит к понятию квазичастицы, называемой магноном. Дисперсионные кривые для магнонов рассчитываются исходя из обменных взаимодействий между магнитными моментами. Из расчетов следует, что в случае ферромагнитного порядка в области малых волновых векторов магнонов  $\omega(q) \sim q^2$ , тогда как случае антиферромагнитного порядка –  $\omega(q) \sim q$ . И эксперимент подтвердил этот вывод. В качестве примера соответствия

модельного расчета и эксперимента на рис. 16.5.2 показаны результаты, полученные для ферримагнетика  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  в работе [McQueeney et al., 2007]. Было показано, что имеется качественное согласие для положений и даже интенсивностей максимумов рассеяния нейтронов на магнонах, хотя явные различия тоже присутствуют. Тем не менее, вычисленные из положений максимумов кривые дисперсии, в целом, хорошо соответствуют расчету.



**Рис. 16.5.2.** Слева: интенсивность неупругого магнитного рассеяния в  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  вдоль направлений  $[\text{HK}0]$  как функция переданной энергии для температур 110 и 130 К (нижняя и верхняя кривые). Справа: модельные вычисления для двух разных значений обменной энергии – 0.44 и 0.69 мэВ. Обозначены дисперсионные моды разной симметрии для А- и В-подрешеток магнитной структуры.

Эксперимент по измерению плотности фоновых состояний сравнительно прост в организации и такие эксперименты проводились еще в 1960-е годы, в том числе в России на реакторе ИРТ (М.Г.Землянов, Н.А.Черноплеков). Первыми образцами были ванадий, у которого когерентное сечение рассеяния практически отсутствует, и порошок никеля, у которого есть изотопы с отрицательной длиной рассеяния и можно приготовить смесь изотопов, рассеивающую некогерентно. Аналогичная процедура возможна для бинарных сплавов, состоящих из элементов с положительной и отрицательной длинами рассеяния, например, Ti-Zr или Mn-Co. Используя далее соотношение (16.3.6) можно непосредственно определить  $g(\omega)$  – плотность фоновых состояний.

В случае многоатомных соединений в соотношение типа (16.3.6) входит функция

$$g(\omega) = \sum_j^N (b_{\text{in}}/M)_j \cdot \exp(-2W_j) \cdot g_j(\omega), \quad (16.5.1)$$

где  $(b_{\text{in}}, M, W)_j$  – некогерентная длина рассеяния, масса и тепловой фактор  $j$ -го атома в элементарной ячейке, содержащей  $N$  атомов,  $g_j(\omega)$  – парциальная

плотность колебаний  $j$ -го атома. Для водородсодержащих соединений множитель  $(b_{in}/M)_H$  настолько велик, что вкладом остальных атомов в сумму (16.5.1) можно пренебречь, т.е. в эксперименте определяется парциальная плотность колебаний атомов водорода.

Уникальная возможность, предоставляемая методом рассеяния нейтронов, состоит в том, что при небольшом числе атомов в соединении определить парциальные плотности можно варьируя его изотопический состав. Примером является работа [Паршин и др., 1991], в которой для соединения CuO были определены плотности фононных состояний для меди и кислорода. Использовались изотопы  $^{63}\text{Cu}$  ( $\sigma_s = 5.2$  b) и  $^{65}\text{Cu}$  ( $\sigma_s = 14.5$  b), на основе которых были приготовлены два образца, содержание изотопов в которых было на уровне 99%. Большая разница в полных сечениях рассеяния (5.2 и 14.5 барн) обеспечила хороший изотопический контраст. Основной результат этой работы показан на рис. 16.5.3, где приведены парциальные плотности фононных состояний меди и кислорода, определенные экспериментально. Видно, что колебания тяжелого (Cu) и легкого (O) атомов заметно разнесены по энергии.

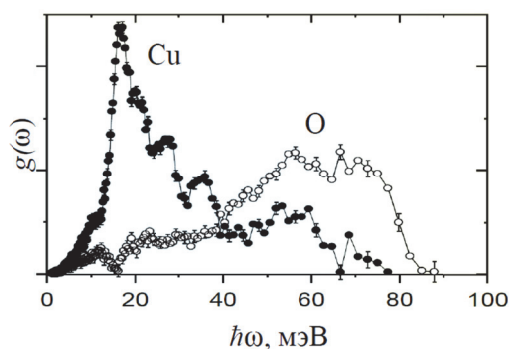


Рис. 16.5.3. Парциальные плотности фононных состояний для меди и кислорода в соединении CuO, определенные с помощью изотопического контрастирования.

Какого типа данные удастся получать об энергетических уровнях магнитного атома, находящегося в кристаллическом электрическом поле (КЭП), создаваемом окружающим его другими атомами (лигандов), разобрано в § 6.4.

### Рекомендуемая литература к главе 16

Алексеев П.А., *Нейтронная спектроскопия и сильнокоррелированные электроны: взгляд изнутри*, УФН **187** (2017) 66-98.

Изюмов Ю.А., Черноплеков Н.А. 1983, *Нейтронная спектроскопия*, М.: Атомиздат.

Shirane G., Shapiro S., Tranquada J. (2002), *Neutron scattering with a triple-axis spectrometer*, Cambridge Univ. Press.

## ГЛАВА 17. НЕЙТРОННАЯ РАДИОГРАФИЯ

### § 17.1. Общие замечания

Метод нейтронной радиографии («Neutron imaging» в англоязычной литературе) комплементарен рентгеновской радиографии, берущей начало с конца 1890-х годов, когда В.Рентген получил первые рентгенографические изображения. Основное назначение метода – получение изображений внутренней структуры изучаемых объектов с пространственным разрешением на уровне долей миллиметра. Суть метода состоит в пропускании широкого пучка нейтронов сквозь объект и регистрации интенсивности прошедшего пучка двумерным ПЧД (рис. 17.1.1). Основными характеристиками радиографической станции являются поток нейтронов от источника, расходимость пучка на объекте и пространственная разрешающая способность детектора. Степень ослабления пучка зависит от конкретного химического состава, плотности и толщины объекта вдоль пути нейтронов, что и дает информацию о его внутренней структуре.

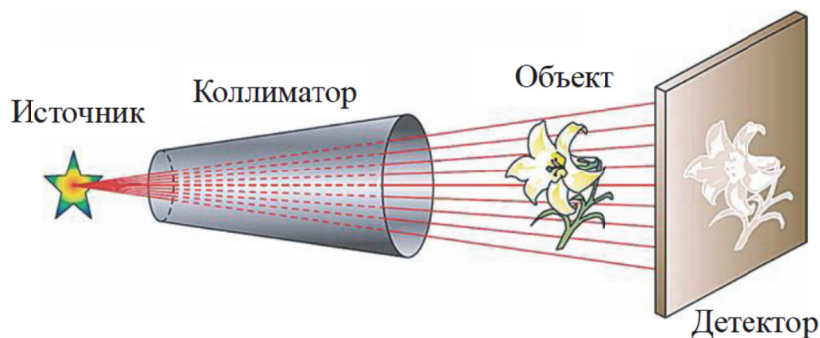
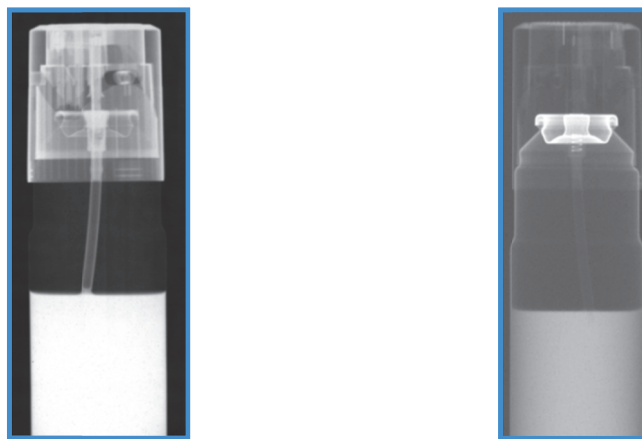


Рис. 17.1.1. Принципиальные узлы радиографической установки. Яркость изображения зависит от пропускания объекта вдоль пути нейтронов.

Комплементарность нейтронной и рентгеновской радиографии определяется, в основном, разным поглощением этих излучений разными материалами. Поглощение рентгеновских лучей плавно нарастает с увеличением номера элемента, тогда как в случае нейтронов оно изменяется нерегулярно от элемента к элементу и, например, велико для некоторых легких элементов (водород, бор, литий), но мало для многих металлов (рис. 17.1.2).

Хотя первые нейтронные радиографические эксперименты были проведены с изотопными источниками, т.е. еще до создания стационарных реакторов, развитие этого метода протекало сравнительно медленно. Основным сдерживающим фактором был процесс детектирования, для которого использовались конверторы (обычно Gd) и фотопленки. Но после того как в

середине 1990-х годов появилась возможность быстрой цифровизации получаемых изображений, метод нейтронной радиографии стал быстро распространяться и соответствующие установки начали создаваться как во всех ведущих нейтронных центрах, так и на сравнительно маломощных источниках нейтронов, поскольку простейшая реализация метода не требует большого потока нейтронов. А в 2000-х годах появилась возможность реализации нейтронной томографии. В этом методе, аналогично рентгеновской томографии с ее разнообразными медицинскими приложениями, 3D изображение формируется из 2D радиографических проекций.



**Рис. 17.1.2.** Комплементарность нейтронного (слева) и рентгеновского (справа) изображений. Контраст деталей из металла и пластика сильно различается.

В России нейтронная радиография успешно развивается в НИЦ КИ (Москва) на реакторе ИР-8 и в ОИЯИ (Дубна) на реакторе ИБР-2. На ИР-8 создан нейтронный томографический комплекс «ДРАКОН», кроме того, нейтронные исследования могут быть дополнены радиографией с использованием  $\mu$ -лучей от активной зоны реактора. На ИБР-2 первые тестовые эксперименты были проведены в 1985 году (В.М.Назаров), в которых были продемонстрированы возможности радиографии на импульсном источнике нейтронов. В частности, была проверена идея управления контрастом изображения при использовании разных интервалов длин волн нейтронов. Стационарно работающая радиографическая станция с разнообразными возможностями начала функционировать на ИБР-2 в 2013 году [Козленко и др., 2016].

Подробное изложение принципов нейтронной радиографии и томографии (далее обозначаются как НР и НТ) содержится в сборнике трудов [Andersen, MacGreevy, Vilheux, Eds., 2009]. Много специальных деталей можно найти в обзорных статьях [Lehmann, 2009, Kardjilov et al., 2011].



## § 17.2. Постановка задачи и предмет исследования

Известно, что ослабление пучка при его пропускании сквозь однородную среду происходит по экспоненте (закон Бугера-Ламберта-Бера)  $I = I_0 \cdot \exp(-\Sigma \cdot t)$ , где  $I_0$  и  $I$  – интенсивности первичного и прошедшего среду пучков,  $\Sigma = N\sigma_{\text{tot}}$  – полное макроскопическое сечение взаимодействия нейтрона со средой (линейный коэффициент ослабления),  $[\Sigma] = \text{см}^{-1}$ ,  $t$  – толщина среды. Для неоднородной по толщине среды и в случае 2D детектирования эту формулу следует обобщить:

$$I(x, y) = I_0(x, y) \cdot \exp\left[-\int_0^t \Sigma(x, y, z) dz\right]. \quad (17.2.1)$$

Здесь предполагается, что пучок направлен вдоль координаты  $z$ ,  $(x, y)$  – координаты в перпендикулярной плоскости. В общем случае толщина и свойства среды вдоль  $z$  зависят от  $(x, y, z)$ . Если  $\Sigma$  не зависит от  $z$ , то (17.2.1) переходит в стандартную формулу. Сечение  $\Sigma$  включает все виды взаимодействия, вследствие которых нейтроны выводятся из пучка и не регистрируются детектором. Как правило, основным является поглощение нейтронов, хотя для некоторых ядер, например, для водорода или никеля, некогерентное рассеяние может превалировать. При рассеянии часть нейтронов выводится из прямого пучка, но может регистрироваться детектором. Этот эффект снижает степень контраста и в какой-то степени искажает получаемые изображения, хотя, в принципе, он может быть учтен при обработке данных. Если используется полихроматический пучок нейтронов, то в сечение взаимодействия следует учесть его зависимость от энергии нейтрона, а в (17.2.1) добавить интегрирование по энергии.

Ключевым фактором, определяющим возможность наблюдения радиографического изображения, является *оптический контраст*, определяемый как относительная разница интенсивностей участков изображения, относящихся к разным структурным составляющим. Его можно определить как  $\delta = (I_1 - I_2) / (I_1 + I_2)$ , где  $I$  – интенсивности участков (контраст Майкельсона). Рассчитаем, к примеру, контраст, возникающий при прохождении некоторых металлов нейтронами с достаточно большой длиной волны, чтобы не сказывалось когерентное рассеяние. Величина  $N$ , входящая в выражение для  $\Sigma$ , рассчитывается по стандартным формулам:  $N = Z/V_c$ , где  $Z$  – число атомов в элементарной ячейке,  $V_c$  – объем ячейки, или  $N = \rho N_A / A$ , где  $\rho$  – плотность вещества  $[\text{г}/\text{см}^3]$ ,  $N_A = 6.022 \cdot 10^{23}$  [моль $^{-1}$ ] – число Авогадро,  $A$  – атомная масса [г/моль]. Результаты расчета пропускания нейтронов с  $\lambda = 5 \text{ \AA}$  слоем меди, марганца, никеля и свинца толщиной 1 см приведены в таблице 17.2.1. Из этих данных следует, что, например, контраст изображения находящихся рядом деталей из Cu и Mn составит  $\delta = 0.77$ , а для Cu и Ni –  $\delta = 0.32$ , что делает их вполне различимыми, в отличие от рентгеновских лучей, для которых контраст для Cu и Ni составляет  $\delta \approx 0.04$ , и эти материалы почти неразличимы. При необходимости, усиление



нейтронного контраста может быть произведено с помощью изотопного замещения.

**Таблица 17.2.1.** Характеристики некоторых металлов и пропускание нейтронов с  $\lambda = 5 \text{ \AA}$  их слоем толщиной 1 см. Здесь  $\rho$  – плотность,  $A$  – атомная масса,  $\sigma_{\text{abs}} (5 \text{ \AA})$  – сечение поглощения,  $\sigma_{\text{inc}}$  – сечение некогерентного рассеяния,  $\Sigma$  – макроскопическое сечение.

Величина	$\rho$	$A$	$\sigma_{\text{abs}} (5 \text{ \AA})$	$\sigma_{\text{inc}}$	$\Sigma$	$I = \exp(-\Sigma)$
Cu	8.92	63.55	10.51	0.55	0.93	0.39
Mn	7.21	54.94	36.97	0.40	2.95	0.05
Ni	8.902	58.69	12.49	5.2	1.62	0.20
Pb	11.34	207.2	0.46	0.0	0.015	0.99

Еще одно важное достоинство НР – возможность работы с большими по поперечному сечению пучками. На современных установках, как правило, имеются две – три позиции для размещения объекта исследования с разным допустимым размером пучка (малым, средним и большим) и, соответственно, разной степенью разрешающей способности.

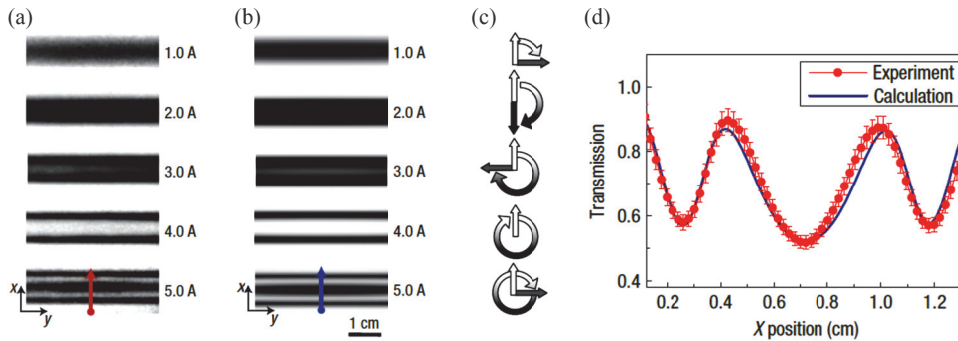
Задачи, для решения которых привлекаются методы НР и НТ, весьма разнообразны и включают как прикладные работы, связанные с неразрушающим контролем изделий, так и фундаментальные исследования некоторых процессов, например, химических реакций, протекающих в батареях и аккумуляторах. Технический прогресс (увеличение потока нейтронов и быстродействия детекторов) позволил проводить эксперименты в реальном времени, включая изучение очень быстрых процессов, вплоть до реакций взрывного типа. Уникальная область применения методов НР и НТ – исследования предметов культурного наследия, археологических и палеонтологических образцов, метеоритов, т.е. объектов, которые не подлежат разрушению. Обстоятельствами, способствующими успеху исследований такого рода, являются возможности варьирования в широких пределах поперечных размеров пучка нейтронов и пространственного разрешения.

### 17.2.1. Виды контраста в нейтронной радиографии

Абсорбционный контраст, основанный на ослаблении пучка при его пропускании сквозь объект, является основным в НР, но используются и некоторые другие виды контраста. Уже упоминалась возможность варьирования абсорбционного контраста путем изменения изотопного состава. Уникальной особенностью НР является существование магнитного контраста, особенно эффективного в сочетании с поляризованным пучком нейтронов. Широкий

максвелловский спектр нейтронов от источника позволяет легко варьировать используемый в эксперименте спектральный интервал и использовать дифракционный контраст, основанный на значительном изменении когерентного сечения рассеяния при смене длины волны. Наконец, также как в случае рентгеновской радиологии, имеется возможность реализации фазового контраста, под которым понимается зависимость изображения от фазовых соотношений между волнами, его формирующими.

Примеры использования магнитного контраста для визуализации доменов и магнитного поля приведены в [Kardjilov et al., 2008, 2011]. Получение изображения доменов основано на уширении пучка нейтронов вследствие преломления и отражения нейтронов на границах между ними. Т.е. используется тот же эффект, что и при наблюдении малоуглового рассеяния на доменной структуре, но нейтронная томография позволила наблюдать трехмерную картину распределения доменов в объеме монокристалла. Для визуализации распределения магнитного поля используется ларморовская прецессия магнитного момента нейтрона, рассмотренная в §7.7. при рассмотрении спин-эхо спектроскопии. Поляризованный пучок нейтронов пропускается сквозь область с магнитным полем, затем сквозь анализатор поляризации и регистрируется детектором. На рис. 17.2.1. показано как меняется распределение магнитного поля в соленоиде (алюминиевый цилиндр диаметром 1 см с намотанным на него проводом) при изменении силы пропускаемого через нее тока. Эксперимент показал довольно хорошее совпадение с результатами вычислений, различие между ними составило не более 3% [Kardjilov et al., 2008]. В этой же работе в аналогичном эксперименте удалось наблюдать изменения конфигурации магнитного поля вблизи сверхпроводника при прохождении температуры сверхпроводящего перехода.



**Рис. 17.2.1.** Сравнение экспериментальных (а) и вычисленных (б) изображений при пересечении пучком поляризованных нейтронов соленоида при пяти разных значениях электрического тока. На (с) схематически иллюстрируется поворот магнитного момента нейтрона. На (д) показано экспериментальное и вычисленное пропускание пучка в направлении, указанном стрелками на (а) и (б).

При изучении объектов, состоящих из простых веществ (металлов, простых оксидов), возможна вариация контраста радиографического изображения, если изменяется величина когерентного сечения рассеяния,  $\sigma_{\text{coh}}$ . Наиболее значительное изменение  $\sigma_{\text{coh}}$  происходит при увеличении длины волны нейтрона за пределы границы Брэгга,  $\lambda > 2d_{\text{max}}$ , где  $d_{\text{max}}$  – максимальное межплоскостное расстояние в кристалле с ненулевым структурным фактором (подробнее см. § 11.6). Например,  $\alpha$ -Fe имеет ОЦК решетку с  $a = 2.867 \text{ \AA}$  с  $d_{\text{max}} = d_{110} = 2.027 \text{ \AA}$ , тогда как  $\gamma$ -Fe имеет ГЦК решетку с  $a = 3.651 \text{ \AA}$  с  $d_{\text{max}} = d_{111} = 2.108 \text{ \AA}$ . В чистом железе структурный переход между этими двумя фазами происходит при  $T_C = 911 \text{ }^\circ\text{C}$ , но в сталях температура перехода может быть значительно ниже. В обзоре [Kardjilov et al., 2011] приведены результаты наблюдения перехода  $\gamma$ -Fe  $\rightarrow$   $\alpha$ -Fe в стали с  $T_C = 380 \text{ }^\circ\text{C}$  в реальном времени с одновременной регистрацией спектров пропускания и радиографического изображения на импульсном источнике нейтронов ISIS (RAL). В спектрах пропускания хорошо наблюдались брэгговские скачки и их постепенное смещение в сторону меньших длин волн по мере нарастания количества  $\alpha$ -Fe. А на радиографическом изображении, полученном при  $\lambda = 4.13 \text{ \AA}$ , была видна граница между фазами, тогда как при больших длинах волн изображение было однородно.

Под методом фазового контрастирования в радиографии понимаются любые приемы, с помощью которых сдвиг между фазами рассеянных волн трансформируется в контраст интенсивности. Вариантом, который уже широко используется в радиографических исследованиях, является использование рефракции нейтронов при переходе между средами с разными показателями преломления. Для тепловых и холодных нейтронов отличие показателя преломления от 1 очень мало (типичное значение  $1 - n \approx 3 \cdot 10^{-7}$ ) и, соответственно, угол преломления не превышает 10 угл. секунд. Тем не менее, эффект преломления можно наблюдать используя соответствующие анализаторы, например, дифракционные решетки или двухкристальный спектрометр на совершенных монокристаллах. Одна из первых демонстраций эффективности этого метода содержится в работе [Подурец и др., 1989], выполненной на реакторе ИР-8 (Москва). Монохроматором и анализатором служили кристаллы германия, угловое разрешение составляло  $\sim 1''$ , площадь пучка –  $2 \times 2 \text{ см}^2$ , в качестве модельного объекта был выбран цилиндр из Al ( $\varnothing 18 \text{ мм}$ ) с вставленными в него двумя стержнями из Cu ( $\varnothing 1.0$  и  $\varnothing 4.3 \text{ мм}$ ). Регистрировались изображения объекта, полученные с обычным абсорбционным контрастом (на прохождение) и с угловой разверткой (с использованием кристалла-анализатора). Абсорбционный контраст составил 15% и 35% для малого и большого диаметра стержней, тогда как рефракционный контраст для них составил 50% и 80%, соответственно. Особое значение метод фазового контраста приобретает для изучения объектов, в которых абсорбционный контраст мал или полностью отсутствует.

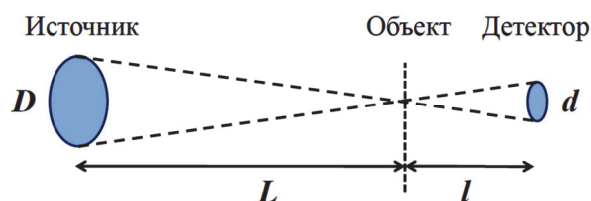
### § 17.3. Установки для нейтронной радиографии

В обзоре [Lehmann, 2009] сформулированы требования к установке по НР, которые необходимо выполнить для ее эффективной работы, а именно:

- размеры пучка должны допускать изучение больших объектов; максимальный размер пучка может достигать 40 см, как правило, с круговым сечением;
- однородная засветка объекта по всей площади, причем спектральный состав не должен зависеть от поперечных координат;
- пучок должен быть «чистым», т.е. с минимальным  $\gamma$ -фоном и наличием нейтронов из других спектральных интервалов;
- по возможности узкий спектральный интервал нейтронов, что облегчает количественную интерпретацию данных;
- разумная полная интенсивность пучка, обеспечивающая компромисс между скоростью набора данных и минимальной активацией объекта.

Выполнение требований, связанных с интенсивностью и размером пучка, в первую очередь зависит от источника нейтронов. Однако, как показывает практика, вполне эффективные исследования методом НР можно выполнять на источниках разной мощности и типа. Так, из приведенных в [Lehmann, 2009] сведений для 18 установок на стационарных реакторах следует, что используемый на них полный поток нейтронов меняется от  $1 \cdot 10^5$  до  $1 \cdot 10^9$  н/см<sup>2</sup>/с.

Одним из факторов, влияющих на пространственную разрешающую способность метода, является степень коллимации первичного пучка нейтронов. Ее принято характеризовать параметром  $R = L/D$ , где  $L$  – расстояние между входной апертурой коллиматора и объектом,  $D$  – диаметр отверстия в коллиматоре. Параметр  $R$  является регулируемым (выбирается подходящее значение  $D$ ) и, как правило, может варьироваться в пределах 200 – 1000. Это означает, что при  $L = 10$  м,  $D$  может изменяться от 1 до 5 см. Некоторое влияние на разрешающую способность оказывает и расстояние между объектом и детектором (рис. 17.3.1). Можно видеть, что если  $l = 5$  см и  $L/D = 1000$ , то размер пятна на детекторе есть  $d = 50$  мкм и разрешение не может быть лучше этой величины.

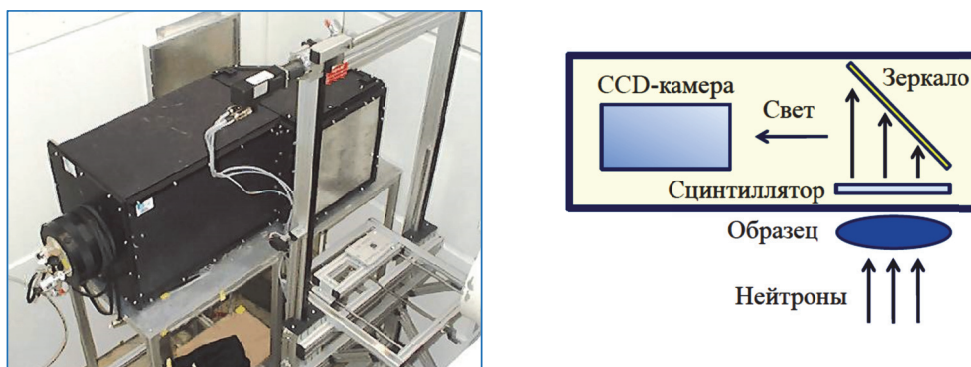


**Рис. 17.3.1.** Иллюстрация влияния расстояния между объектом и детектором на пространственное разрешение. Из-за расходимости первичного пучка, вместо точки на детекторе наблюдается пятно  $d = (l/L) \cdot D$ .

Ключевым и наиболее сложным узлом любой радиографической установки является детектор. В идеальном варианте детектор должен быть двумерным, с большой чувствительной площадью, малым размером пикселя, малым временем считывания данных. Поскольку некоторые из этих требований противоречат друг другу, например, на большой площади трудно обеспечить малый размер пикселя, а большое число пикселей предполагает немалое время считывания данных, то приходится использовать компромиссные решения. Детекторы нового поколения, появившиеся в середине 1990-х годов вместо фотопленок, обеспечили высокую чувствительность, большой динамический диапазон, высокую степень линейности и возможность непосредственной цифровизации данных. Время набора данных для одной проекции сократилось до секунд, что позволило перейти от 2D радиографических изображений к 3D томографическим.

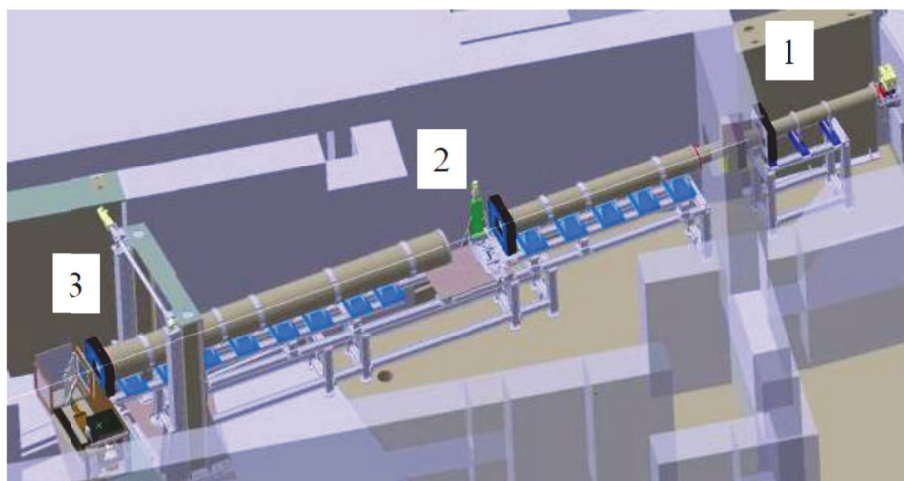
Поскольку размер пикселя на детекторе во многом определяет разрешение установки, то используются только детекторы с высоким пространственным разрешением (подробнее о них см. раздел 8.6 в части II). В качестве конверторов, как правило, применяются материалы, содержащие  ${}^6\text{Li}$  или Gd. Обычные для других типов нейтронных спектрометров конверторы с  ${}^{10}\text{B}$  и  ${}^3\text{He}$  в радиографии фактически не применяются. Наилучшее пространственное разрешение (до  $\sim 10$  мкм) удается получить с детекторами фотографического типа (Imaging plate) с цифровым съемом информации. Наиболее распространенными (вследствие их универсальности) стали детекторы на основе сцинтилляционного экрана в сочетании с CCD-камерой (рис. 17.3.2).

Схема и состав узлов установок на стационарных и импульсных источниках нейтронов фактически одинаковы. Различие между ними состоит только в формировании узкого спектрального интервала, если это требуется. На стационарных источниках для этого применяются селекторы скоростей (§ 11.5), на импульсных источниках дополнительных прерывателей не требуется.



**Рис. 17.3.2.** Внешний вид сцинтилляционного детектора для радиографии (слева) и схема расположения его компонент (справа). Перед детектором находится рамка для крепления образцов. Между зеркалом и камерой может располагаться объектив, фокусирующий свет на камеру.

Расположение основных узлов типичной радиографической установки (ICON, PSI) показано на рис. 17.3.3. На ней предусмотрены две позиции для размещения образцов малых или средних (от 30×30 до 150×150 мм) и больших (от 250×250 и больше). Оптимальная величина ( $L/D$ ) для этих двух позиций составляет ~300 и ~600, размер пикселя на детекторе – 0.015 и 0.15 мм, типичное время экспозиции – 90 и 8 секунд, соответственно. Возможные опции исследований включают радиографию, томографию, стробоскопические измерения, эксперименты в реальном времени, эксперименты с выбором диапазона длин волн нейтронов ( $\Delta\lambda/\lambda \approx 0.15$ ), эксперименты с использованием фазового контраста с применением дифракционных решеток.



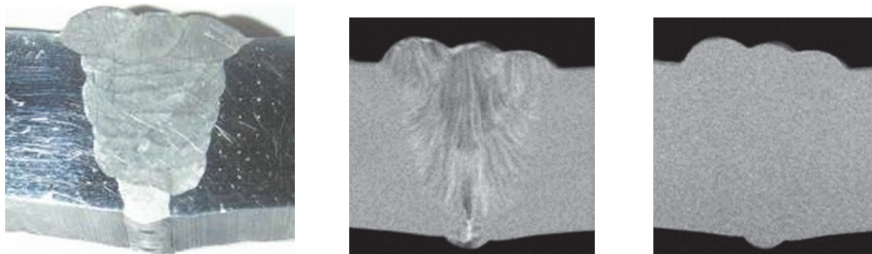
**Рис. 17.3.3.** Общий вид радиографической установки ICON (SINQ, PSI). Источник нейтронов находится за стеной биологической защиты справа. В защите расположен первичный коллиматор со сменными апертурами. В позиции 1 предусмотрено место для установки селектора скоростей. Позиции 2 ( $L \approx 7$  м) и 3 ( $L \approx 12$  м) предназначены для экспериментов с образцами малых (средних) и больших размеров, соответственно.

В 2000-х годах возникла и развивается тенденция соединения радиографического анализа с другими нейтронографическими методиками, прежде всего, с дифракцией и малоугловым рассеянием. Практическим ее выражением является объединение на вновь создаваемых установках двух или трех методик. Примером является установка IMAT на импульсном источнике нейтронов ISIS, на которой параллельно с радиографическим анализом возможна регистрация дифракционных спектров детекторами, расположенными при углах рассеяния  $\pm 90^\circ$ , в основном, для анализа внутренних напряжений и кристаллографической текстуры.

### § 17.4. Задачи, решаемые методом нейтронной радиографии

Во вводном разделе уже были перечислены основные направления, по которым ведутся радиографические нейтронные исследования. Наиболее интересные и практически значимые результаты, получаемые этим методом, определяются возможностью неразрушающей визуализации внутренней структуры разнообразных объектов с пространственным разрешением на уровне долей миллиметра. Наряду со стандартной для нейтронной радиографии практикой анализа материаловедческих объектов (контроль инженерных и технологических изделий) специфические особенности метода позволили с успехом применить его в исследованиях предметов культурного наследия [Mannes et al., 2014], археологических [Сапрыкина и др., 2019] и палеонтологических [Калоян и др., 2014] образцов. Для большей объективности и полноты получаемой информации, как правило, проводится комплементарный радиографический анализ с использованием рентгеновского и синхротронного излучений. Не разбирая подробно проводимые исследования, результаты которых интересны, в основном, специалистам из смежных наук, приведем здесь только несколько их иллюстраций.

На рис. 17.4.1 показано как качество радиографического изображения может быть улучшено при сужении спектрального интервала и выборе подходящей длины волны нейтронов [Lehmann et al., 2009]. Объектом эксперимента являлся сварной шов и абсорбционный контраст изображения в «белом» пучке нейтронов или при большой длине волны был недостаточен для выявления деталей его структуры. Но при использовании узкого спектрального интервала и  $\lambda < 2d_{\max}$  возникает «дифракционный» контраст, достаточный для наблюдения структуры шва.

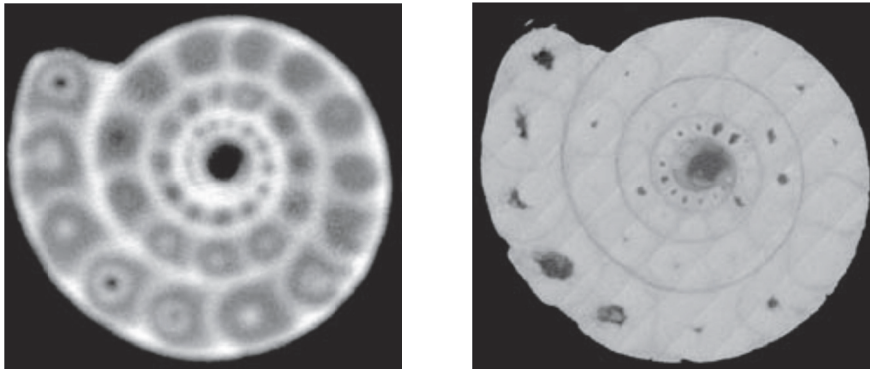


**Рис. 17.4.1.** Фотография сварного шва (слева) и его радиографические изображения, полученные при использовании монохроматического ( $\Delta\lambda/\lambda \approx 0.03$ ) пучка нейтронов с разной средней длиной волны  $\lambda = 3.5 \text{ \AA}$  (в середине) и  $\lambda = 4.2 \text{ \AA}$  (справа).

Рис. 17.4.2 иллюстрирует комплементарность нейтронного и рентгеновского радиографических изображений. На рентгеновском снимке четко видны границы между витками спирали и разделение раковины аммонита на



отдельные камеры. Нейтронный снимок дает не столь четкое, но более контрастное изображение с большим числом деталей. Такое поведение объясняется присутствием в материале гидроксида железа, который имеет плавное распределение в зазорах между камерами.



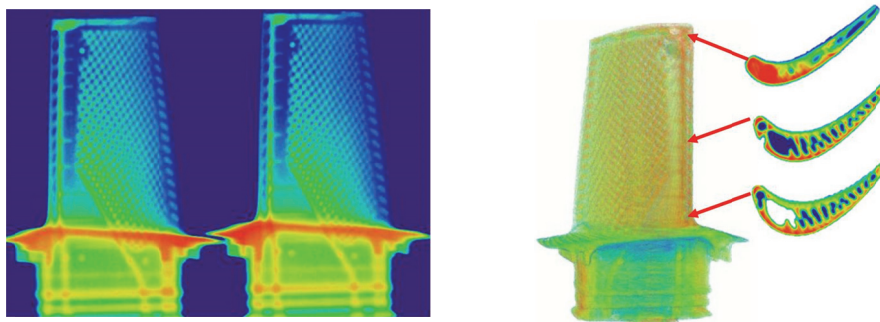
**Рис. 17.4.2.** Нейтронное (слева) и рентгеновское (справа) изображение аммонита с раковиной (ее диаметр – около 30 мм), состоящей из нескольких оборотов. Рисунки из работы [Lehmann, 2009].

В экспериментах, выполненных на радиографической станции NRT [Козленко и др., 2016] на реакторе ИБР-2, изучались особенности внутренней структуры монокристаллических турбинных лопаток, изготовленных из никелевого сплава. Установка NRT выполнена по стандартной схеме с расстоянием между входом в коллиматорную систему и местом расположения образца  $L = 10$  м. Входная апертура коллиматоров может варьироваться от 5 до 0.5 см, т.е. параметр  $R = L/D$ , который во многом определяет разрешающую способность установки, может меняться от 200 до 2000. При  $D = 5$  см полный поток нейтронов на образце составляет около  $5 \cdot 10^6$  н/см<sup>2</sup>/с, что позволяет регистрировать отдельные изображения за 10 с. Детекторная система NRT состоит из конвертора <sup>6</sup>LiF/ZnS толщиной 0.2 мм. Образованные в нем фотоны после отражения от зеркала регистрируются охлаждаемой CCD-видеокамерой с размером матрицы 36×24 мм и размером пикселя 9×9 мкм. При  $R = 200$  и размере пучка на образце 200×200 мм пространственное разрешение изображения составляет около 0.3 мм. Для восстановления томографического изображения на NRT осуществляются 3D повороты образца с варьируемым углом поворота ( $\Delta\varphi_{\min} = 0.02^\circ$ ).

Часть полученных результатов представлена на рис. 17.4.3. Первый из них демонстрирует высокую степень идентичности двух разных лопаток, которая важна для стабильной работы машин и механизмов (компрессоров, насосов, турбин), оснащенных колесами с установленными на них лопатками. Об идентичности можно судить как по видимым деталям внутреннего строения, так и по цветовой гамме, отражающей толщину материала, поглощающего нейтроны.



Томографическая реконструкция внутреннего строения позволяет получать изображение среза лопатки в любом заданном сечении и судить в деталях ее строения.



**Рис. 17.4.3.** Нейтронные радиограммы двух разных монокристаллических турбинных лопаток (слева). Видны внутренние каналы охлаждения лопаток, перегородки, некоторые особенности их внутреннего строения. Цвета соответствуют степени поглощения нейтронов в материале: синий – минимальному поглощению в перо лопатки, красный – максимальному поглощению в бордюре между опорой и пером лопатки. Справа показано 3D томографическое изображение монокристаллической турбинной лопатки и ее горизонтальные срезы в указанных сечениях.

#### Рекомендуемая литература к главе 17

Lehmann E.H. 2009, *Neutron Imaging Methods and Applications*, Chapter 11 in *Neutron applications in Earth, Energy and environmental sciences*, L. Liyuan, R. Rinaldi, H. Schober (Ed-s.), Springer.

**Ключевые события (в мире и в России) в развитии нейтронных методов  
исследования конденсированных сред**

- 1920 Гипотеза о существовании нейтрона (Rutherford)
- 1932 Открытие нейтрона (Chadwick)
- 1934 Замедление нейтронов (Fermi)
- 1936 Демонстрация дифракции нейтронов (Mitchell & Powers, von Halban & Preiswerk)
- 1939 BF<sub>3</sub> нейтронный детектор (Korff & Danforth)
- 1943-44 Первые нейтронные реакторы в США (Argonne, Oak Ridge)
- 1946 Первый нейтронный реактор в Европе (Ф-1, Москва, СССР)
- 1946 Нейтронный дифрактометр в Oak Ridge (США)
- 1946-48 Дифракционные эксперименты (Wollan & Shull) на простых структурах (NaCl, NaH, NaD)
- 1946 Отражение нейтронов от поверхности (Fermi & Zinn)
- 1947 Первая таблица нейтронных когерентных длин рассеяния для 20 элементов (Fermi & Marshall)
- 1948 Изотопические эффекты в дифракции нейтронов (Shull, Wollan et al.)
- 1949 Прямое подтверждение антиферромагнетизма в MnO (Shull & Smart)
- 1950 Двухкристальный спектрометр для исследований монокристаллов на реакторе ВЕРО (Bacon, Harwell, Великобритания)
- 1950 Первые эксперименты с использованием малоуглового рассеяния нейтронов (Weiss)
- 1951 Получение пучка поляризованных нейтронов отражением от монокристалла (Shull)
- 1951-55 Исследования водородосодержащих структур, распределение катионов в шпинелях (Bacon), ферро- и ферримагнитные структуры
- 1952 Исследования атомной динамики методом неупругого рассеяния нейтронов (Brockhouse, Chalk River, Канада)
- 1953 Первый обзор по дифракции нейтронов (Bacon & Lonsdale)
- 1957 Реактор ИРТ в Москве (Курчатовский институт)
- 1958 Функция разрешения нейтронного дифрактометра (Caglioti et al.)
- 1959 Реактор ВВР-М в Гатчине (Петербургский институт ядерной физики)
- 1959 Импульсный бустер на электронном ускорителе (Harwell, Великобритания)
- 1960 Импульсный реактор ИБР (ОИЯИ)
- 1962 <sup>3</sup>He нейтронный детектор (Mills, Caldwell & Morgan)
- 1963 Первые дифракционные эксперименты с использованием метода времени пролета (Шапиро и др., ОИЯИ)
- 1964 Импульсный бустер на электронном ускорителе (ОИЯИ)

- 1965 Первый пучковый высокопоточный реактор HFBR мощностью 100 МВт (BNL, США)
- 1964 Поляризация нейтронов пропусканием через водородную мишень (Шапиро и др., ОИЯИ)
- 1966 Первые зеркальные нейтроноводы (Maier-Leibnitz, Aefeld, FRM, ФРГ)
- 1967 Профильный метод анализа дифракционных данных (Rietveld)
- 1968 Открытие ультрахолодных нейтронов (Шапиро и др., Дубна, ОИЯИ)
- 1968 Двухкоординатный позиционно-чувствительный детектор (Charpak)
- 1971 Высокопоточный реактор HFR мощностью 58 МВт (ILL, Grenoble, Франция)
- 1972 Спин-эхо спектроскопия (Mezei, ILL, Франция)
- 1974 Импульсный нейтронный источник ZING-P (IPNS, США)
- 1975 Дифрактометр высокого разрешения D1A (Hewat, ILL, Франция)
- 1976 Первый спектрометр МУРН на импульсном источнике нейтронов (Останевич, Чер, ОИЯИ)
- 1979-83 Монография “Нейтроны и твердое тело” (в 3-х томах), Озеров Р.П., Ред.
- 1981 Первая конференция по нейтронной радиографии (San Diego, США)
- 1984 Импульсный реактор ИБР-2 (ОИЯИ)
- 1984 Фурье-дифрактометр mini-SFINKS на стационарном реакторе (ПИЯФ)
- 1985 Специализированный импульсный нейтронный источник ISIS на основе протонного ускорителя (RAL, Великобритания)
- 1986 Государственная премия СССР за новые методы исследования твердого тела на основе рассеяния нейтронов
- 1987 Первые нейтронные рефлектометры с поляризованным пучком (Felsher (ANL), Penfold (ISIS), Корнеев (ИБР-2))
- 1990 Детектор на основе микроканальных пластин с разрешением ~15 мкм
- 1992 Фурье-дифрактометр HRFD на импульсном реакторе (ОИЯИ)
- 1994 Нобелевская премия по физике «За новаторские работы по развитию методов рассеяния нейтронов для изучения конденсированных сред», К.Шалл и Б.Брокхауз
- 1996 SNS-источник непрерывного действия SINQ (PSI, Швейцария)
- 2000 Государственная премия Российской Федерации за разработку и реализацию новых методов структурной нейтронографии по времени пролета
- 2014 Началось сооружение импульсного SNS-источника ESS (Lund, Швеция)

**ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА К ЧАСТИ I**

Абов Ю.Г., Гулько А.Д., Крупчицкий П.А. (1966), *Поляризованные медленные нейтроны*, М: Атомиздат.

Авдеев М.В., Аксенов В.Л. (2010), *УФН*, **180**, 1009.

Аксенов В.Л., Балагуров А.М. (1996) *УФН*, **166**, 995.

Аксенов В.Л., Балагуров А.М. (2016) *УФН*, **186**, 293.

Аксенов В.Л., Горемычкин Е.А., Фраунхейм Т. (1982), *IV Международная школа по нейтронной физике, Сборник лекций*, Дубна: ОИЯИ, ДЗ, 4-82-704, 389.

Аксенов В.Л., Игнатович В.К., Никитенко Ю.В. (2006), *Кристаллография*, **51**, № 5, 23.

Аксенов В.Л., Никитенко Ю.В., Кожевников С.В., Раду Ф., Круис Р., Реквельдт Т. (2000), *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования\**, № 8, 10.

Аксенов В.Л., Плакида Н.М. (1978), *ТМФ*, **34**, 353; **35**, 104.

Аксенов В.Л., Плакида Н.М., Стаменкович С. (1984), *Рассеяние нейтронов сегнетоэлектриками*, М: Энергоатомиздат.

Аксенов В.Л., Тропин Т.В. (2020), *Лекции по теории конденсированного состояния* – М.: Физический факультет МГУ им. М.В.Ломоносова, 2020, 444 с. ISBN 978-5-8279-0183-9.

Александров Л., Загребнов В.А., Козлов Ж.А., Приезжев В.Б. (1975), *ЖЭТФ*, **68**, в. 5, 1825.

Александров Ю.А. (1992), *Фундаментальные свойства нейтрона*, М.: Энергоатомиздат.

Алексеев П.А. (2017), *УФН*, **187**, № 1, 65.

Алфименков В.П., Пикельнер Л.Б. (1995), *Физика ЭЧАЯ*, **26(6)**, 1524.

Андреефф А., Каун Л.П., Фраунхейм Т., Липпольд Б., Матц В. (1981), *Физика ЭЧАЯ*, **12**, № 2, 277.

---

\*) Далее «Поверхность. РСНИ».

- Ахиезер А., Померанчук И. (1948), *ЖЭТФ*, **18**, 475.
- Ахиезер А., Померанчук И. (1950), *Некоторые вопросы теории ядра*, М.-Л.: ГИТТЛ.
- Базь А.И., Зельдович Я.Б., Переломов А.М. (1971), *Рассеяние, реакции и распады в нерелятивистской квантовой механике*, М: Наука.
- Балашов В.В. (2012), *Квантовая теория столкновений*, М.: МГУ, 2-е изд.
- Бедняков В.А. (2021) *Письма в ЭЧАЯ*, **18**, № 4, 321.
- Благовещенский Н.М., Богоявленский И.В., Карнацевич Л.В., Козлов Ж.А., Миленко Ю.,Я., Парфенов В.А., Пучков А.В. (1983), *Письма в ЖЭТФ*, **37**, в. 3, 152.
- Блохинцев Д.И. (2015), *Основы квантовой механики*, изд. 8, М.: URSS.
- Боголюбов Н.Н. (2006) *Собрание научных трудов в 12 томах*, М: Наука; т. 6 *Равновесная статистическая механика*, т. 8, *Теория идеального бозе-газа, сверхтекучести и сверхпроводимости*.
- Боголюбов Н.Н., Тябликов С.В. (1959), *ВАН СССР*, **126**, 53.
- Богоявленский И.В., Карнацевич Л.В., Козлов Ж.А., Пучков А.В. (1990), *ФНТ*, **16**, 139.
- Бронштейн М.П. (1937), *ЖЭТФ*, **7**, 357.
- Брус А., Каули Р. (1984), *Структурные фазовые переходы*, М.: Мир.
- Весна В.А., Гледенов Ю.М., Несвижевский В.В, Седышев П.В., Шульгина Е.В. (2021), *Физика ЭЧАЯ*, **51(2)**, 5.
- Бунаков В.Е., Краснов Л.В. (2014), *Нейтронная физика*, СПб.: СПбГУ.
- Гагаринский А.Ю., Яцишина Е.Б. (2017), *Курчатовские реакторы*, ред. М.В.Ковальчук, М: НИЦ «Курчатовский институт».
- Галанин А.Д. (1984), *Введение в теорию ядерных реакторов на тепловых нейтронах*. М.: Энергоатомиздат.
- Гуревич И.И., Тарасов Л.В. (1965), *Физика нейтронов низких энергий*, М.: Наука.
- Гуревич И.И., Протасов В.П. (1997), *Нейтронная физика*, М.: Энергоатомиздат.

- Докукин Е.Б., Козлов Ж.А., Парфенов В.А., Пучков А.В. (1978), *ЖЭТФ*, **75**, в. 6, 2273.
- Драбкин Г.М., Забидаров Е.И., Касман Я.А., Окороков А.И. (1969), *ЖЭТФ*, **56**, 478.
- Жерненко М., Клишко С., Лаутер-Пасюк В., Топерверг Б., Милев М., Ромашев Л., Устинов В., Лаутер Х., Аксенов В. (2008), *Кристаллография*, **53(2)**, 321.
- Зельдович Я.Б., Харитон Ю.Б. (1939), *ЖЭТФ*, **9**, 1425.
- Зельдович Я.Б., Харитон Ю.Б. (1940), *ЖЭТФ*, **10**, 29; 477.
- Зельдович Я.Б. (1959) *ЖЭТФ*, **36**, 1952.
- Зубарев Д.Н. (1971) *Неравновесная статистическая термодинамика*, М.: Наука, 1971.
- Иверонова В.И., Ревкевич Г.П. (1978), *Теория рассеяния рентгеновских лучей*, М.: МГУ.
- Игнатович В.К. (1986), *Физика ультрахолодных нейтронов*, М.: Наука.
- Игнатович В.К. (2006), *Нейтронная оптика*, М.: Физматлит.
- Изюмов Ю.А. (1961), *ФММ*, **11**, 801.
- Изюмов Ю.А. (1962), *ЖЭТФ*, **42**, 1673.
- Изюмов Ю.А. (1963), *УФН*, **80**, 41.
- Изюмов Ю.А. (1987), *Дифракция нейтронов на длиннопериодических структурах*, М.: Энергоатомиздат.
- Изюмов Ю.А., Малеев С.В. (1961), *ЖЭТФ*, **41**, 1644.
- Изюмов Ю.А., Найш В.Е., Озеров Р.П. (1981), *Нейтроннография магнетиков*, М.: Атомиздат.
- Изюмов Ю.А., Скрябин Ю.Н. (2002), *Базовые модели в квантовой теории магнетизма*, Екатеринбург: ИФМ УрО РАН.
- Изюмов Ю.А., Черноплеков Н.А. (1983), *Нейтронная спектроскопия*, М.: Энергоатомиздат.

- Ишханов Б.С., Капитонов И.М., Юдин Н.П. (2017), *Частицы и атомные ядра*, М.: МГУ.
- Кипин Дж.Р. (1967), *Физические основы кинетики ядерных реакторов*, М.: Атомиздат.
- Кожевников С.В., Игнатович В.К., Раду Ф. (2018), *Поверхность. РСНИ*, № 2, 12.
- Кожевников С.В., Отт Ф., Раду Ф. (2018а), *ЭЧАЯ*, **49**, 582.
- Кожевников С.В. (2019), *Докторская диссертация*, Дубна: ОИЯИ.
- Козлов Ж.А., Парфенов В.А., Сиджимов В.Б. (1973), *Сообщение ОИЯИ РЗ-7519*, Дубна: ОИЯИ.
- Козлов Ж.А. (1996), *Физика ЭЧАЯ*, **27**, в. 2, 1705.
- Кондон Е., Шортли Т. (1949). *Теория атомных спектров*, М.: ИЛ.
- Крупчицкий П.А. (1985), *Фундаментальные исследования с поляризованными медленными нейтронами*, М.: Энергоатомиздат.
- Ландау Л.Д. (1941), *ЖЭТФ*, **11**, 2592.
- Ландау Л.Д. (1947), *ЖЭТФ*, **11**, 91.
- Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. (2001), *Теоретическая физика в 10 томах*, М.: Физматлит; т. 2. *Теория поля*; т. 3. *Квантовая механика*; т. 4. *Квантовая электродинамика*; т. 8. *Электродинамика сплошных сред*; т. 10. *Гидродинамика*.
- Лущиков В.И., Покотиловский Ю.Н., Стрелков А.В., Шапиро Ф.Л. (1969), *Письма в ЖЭТФ*, **9**, в. 1, 40.
- Ма Ш. (1980), *Современная теория критических явлений*, М.: Мир.
- Малеев С.В. (1958), *ЖЭТФ*, **33**, 129.
- Малеев С.В. (1961), *ЖЭТФ*, **40**, 1224.
- Малеев С.В. (1965), *Письма в ЖЭТФ*, **2**, 545.
- Малеев С.В. (1995, а), *Исследование конденсированных сред поляризованными нейтронами, Лекция I: Нейтронная поляризация*, ПИЯФ № 2083, Гатчина: ПИЯФ РАН, 27 с.

Малеев С.В. (1995, б), *Исследование конденсированных сред поляризованными нейтронами, Лекция II: Взаимодействие нейтронов с веществом*, ПИЯФ № 2093, Гатчина: ПИЯФ РАН, 29 с.

Малеев С.В. (1995, в), *Исследование конденсированных сред поляризованными нейтронами, Лекция III: Нейтронная оптика*, ПИЯФ № 2110, Гатчина: ПИЯФ РАН, 29 с.

Малеев С.В. (2002), *УФН*, **172(6)**, 617.

Ньютон Р. (1969), *Теория рассеяния волн и частиц*, М.: Мир.

Озеров Р.П (1952), *УФН*, **XLVII**, 445.

Окороков А.И. (1995), *Малоугловое рассеяние поляризованных нейтронов*, Препринт 2079, Гатчина: ПИЯФ РАН.

Окороков А.И. (2016), *Школа физики поляризованных нейтронов в отделе исследования конденсированного состояния Петербургского института ядерной физики*, Препринт 2989, Гатчина: НИЦ КИ ПИЯФ, 68 с.

Померанчук И. (1938), *Sov. Phys.*, **18**, 65.

Приезжев В.Б. (1969), *К теории элементарных возбуждений в жидкости*, ОИЯИ Р4-4502, Дубна: ОИЯИ.

Приезжев В.Б (1973), *Квазикристаллическая модель жидкого гелия*, ОИЯИ Р4-7209, Дубна: ОИЯИ.

Пучков А.В., Богоявленский И.В., Карнацевич Л.В., Козлов Ж.А. (1990), *Материалы VI Международной школы по нейтронной физике*, **2**, 201, ОИЯИ – Дубна.

Свергун Д.И., Фейгин Л.А. (1986), *Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние*, М.: Наука.

Сердюк И., Заккаи Н., Заккаи Дж. (2010), *Методы в молекулярной биофизике. Структура. Функция. Динамика*, в 2-х томах, М.: КДУ.

Серебров А.П. (2015), *УФН*, **185**, 1179.

Серебров А.П. (2019) *УФН*, **189**, 635.

Стогов Ю.В. (2008), *Основы нейтронной физики. Учебное пособие*, М.: МИФИ.



- Стрелков А.В. (2004), *УФН*, **174**, №5, 565.
- Тейлор Дж. (1975), *Теория рассеяния*, М.: Мир.
- Турчин В.Ф. (1963), *Медленные нейтроны*, М.: Госатомиздат.
- Тябликов С.В. (1965), *Методы квантовой теории магнетизма*, М.: Наука.
- Ферми Э. (1952), *Оптические аналогии в свойствах нейтронов*, в: *Лекции по атомной физике*. М.: ИЛ.
- Ферми Энрико (1971) *Научные труды в двух томах*, ред. Б.М.Понтекорво, том 1, М.: Наука.
- Ферми Энрико (1972), *Научные труды в двух томах*, ред. Б.М.Понтекорво, том 2, М.: Наука.
- Франк И.М. (1972), *Природа*, № 9, 24.
- Франк И.М. (1983), в: *Нейтрон. К пятидесятилетию открытия*, М.: Наука, 5 – 31.
- Шабалин Е.П. (2005), *Физика ЭЧАЯ*, **36**, № 6, 1425.
- Ширков Д.В. (2009), *УФН*, **179**, в. 6, 581.
- Шпрингер Т. (1980), в: *Динамические свойства твердых тел и жидкостей*. М.: Мир, 335.
- Юз Д. (1954) *Нейтронные исследования на ядерных котлах*. М.: ИЛ (перевод с англ. D.J.Hughes, *Pile Neutron Research*, Cambridge, Mass, 1953).
- Юз Д. (1955) *Нейтронная оптика*. М.: ИЛ (перевод с англ. D.J.Hughes, *Neutron Optics*, Ntw York, 1954).
- Aksenov V.L., Dokukin E.B. and Nikitenko Yu.V. (1995), *Physica B*, **213/214**, 100.
- Aksenov V.L., Khaidukov Yu.N. and Nikitenko Yu.V. (2010), *J. Phys., Conf. Ser.*, **211**, 012022.
- Aksenov V.L., Nikitenko Yu.V. and Kozhevnikov S.V. (2001), *Physica B*, **297**, 94.

- Alvarez L.W. (1938) *Phys. Rev.*, **54**, 609.
- Amaldi E. and Fermi E. (1936) *Phys. Rev.*, **50**, 899.
- Anderson H., Fermi E. and Marshall L. (1946), *Phys. Rev.*, **50**, 486.
- Birr M., Heidemann A. and Alefeld B. (1971), *Nucl. Instr. Methods Phys. Res.*, **95**, 435.
- Bloch F (1936), *Phys. Rev.*, **50**, 259.
- Blume M. (1963), *Phys. Rev.*, **130**, 1670.
- Blume M. (1964), *Phys. Rev.*, **133**, A1366.
- Brockhouse B.N. (1957), *Phys. Rev.*, **106**, 859.
- Brückel Th. and Schweika W. (Eds.) (2002), *Matter and Materials*, **12**, Julich: Forschungszentrum – Julich.
- Burgy M.T., Hughes D.J., Wallance J.R., Heller R.B. and Woolf W.E (1950), *Phys. Rev.*, **80**, 953.
- Callen H.B. and Welton T.A. (1951), *Phys. Rev.*, **83**, 34.
- Carpenter J.M. and Loong C.-K. (2015), *Elements of slow-neutron scattering*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, UK.
- Chadwick J. (1962), *Actes du X Congres International d'History des Sciences*. Ithaka (N.Y.). Перевод в кн. *Нейтрон. Предыстория, открытие, последствия*. М.: Наука, 1975, 5.
- Debye P. (1915), *Ann. Physik B*, **46**, 809.
- Felcher G.P., Hillecke R.O., Crawford B.K., Haumann J., Kleb R. and Ostrowski G. (1987), *Rev. Sci. Instrum.*, **58**, 609.
- Fermi E. (1936), *Ric. Scientifica*, **7**(2), 13 (перевод в [Ферми, 1972, т. 1, с. 741]).
- Fermi (1946), *A Course in Neutron Physics*, LADC-225, Los Alamos (перевод в [Ферми, 1972, т. 2, с. 236]).
- Fermi E. and Marshall L. (1947) *Phys. Rev.* **71**, 666.
- Fermi E. and Zinn W. (1946), *Phys. Rev.*, **70**, 103.

- Feynman R.P. (1954), *Phys. Rev.*, **94**, 262.
- Feynman R.P. and Cohen M. (1956), *Phys. Rev.*, **102**, 1189.
- Fratzl P. (1999), *Small-angle neutron scattering in material science*, In: KFKI-1999-04/E Report, Budapest, Hungary.
- Furrer A., Mesot J. and Strasse Th. (2009) *Neutron scattering in condensed matter physics*, Singapore: World Scientific.
- Gell-Man M. and Goldberger M.R. (1953), *Phys. Rev.* **91**, 308.
- Glyde H.R. (1994), *Excitations in Liquid and Solid Helium*, Clarendon Press, Oxford.
- Götze W. and Lücke M. (1976), *Phys. Rev.B*, **13**, 3825.
- Halpern O. (1949), *Phys.Rev.*,**75**, 343.
- Halpern O. and Johnson M.H. (1937), *Phys. Rev.*, **52**, 52.
- Halpern O. and Johnson M.H. (1939), *Phys. Rev.*, **55**, 898.
- Halpern O. and Holstein T. (1941), *Phys. Rev.*, **59**, 960.
- Herpin A. and Meriel P (1961), *J. Phys. (France)*, **22**, 337.
- Hohenberg P.C. and Platzman P.M. (1966), *Phys. Rev.*, **152**, 198.
- Hughes D.J. and Burgy M.T. (1951), *Phys. Rev.*, **81**, 498.
- Jernenkov M., Klimko S., Lauter-Pasyk V., Lauter H., Aksenov V. and Toperverg B. (2006).*Physica B* **385-386**, 471.
- Lauter H.J.C., Lauter V. and Toperverg B.P. (2012). Reflectivity, Off-Specular Scattering, and GI-SAS: Neutrons. In: *Polimer Science:A Comprehensive Reference*, **2**, 411.
- Lauter H.J., Toperverg B.P., Lauter-Pasyuk V., Petrenko A. and Aksenov V. (2004), *Physica B*, **350**, e759.
- Lippman B.A. and Schwinger J. (1950) *Phys. Rev.*, **79**, 469.
- Lovesey S.W. (1984), *Theory of neutron scattering from condensed matter*, **1, 2**, Oxford: Clarendon Press.

- Mezei F. (1972), *Zeitschrift für Physik*, **255**, 146.
- Mezei F. (1980), *Neutron Spin Echo, Lecture Notes in Physics*, **128**, Berlin: Springer.
- Mitchel D.P. and Powers P.N. (1936), *Phys. Rev.*, **50**, 486.
- Natkaniec I. et al. (2003), *Proc. of the 16th Meeting of the Intern. Collab. on Advanced Neutron Sources (ICANS – XVI)*, Dusseldorf – Neuss, Germany, V.II.
- Nesvizhevsky V.V., Gudkov V., Protasov K.V., Snow W.M., Voronin A.Yu. (2018). *EPJ Web of Conferences*, **191**, 01005.
- Palevsky H., Otnes K. and Larson K.E. (1958), *Phys. Rev.*, **112**, 11.
- Sears V.F. (1989), *Neutron Optics. An Introduction to the Theory of Neutron Optical Phenomena and Their Application*, NY – Oxford: Oxford Univ. Press.
- Shull C.G. and Smart J.S. (1949), *Phys. Rev.*, **76**, 1256.
- Shull C.G., Wollan C.E., Morton G.A. et al. (1948), *Phys. Rev.*, **73**, 842.
- Squires G.L. (2012), *Introduction to the theory of thermal neutron scattering*, Cambridge Univ. Press, 3-rd Edition.
- Steinsvoll O., Shikane G., Nathans R. and Blume M. (1967), *Phys. Rev.*, **161**, 499.
- Schwinger J. (1937), *Phys. Rev.*, **51**, 544.
- Toperverg B.P. (2002), Polarized neutron reflection and off-specular scattering, in: *Polarized Neutron Scattering* (Eds. Bruckel Th. and Schweika W.), Matter and Materials, Julich, ch. 9, 249.
- Toperverg B.P. (2015), *Phys. of Metal and Metallography*, **116**, № 13, 1337.
- Toperverg B.P., Lauter H.J. and Lauter-Pasyuk V.V. (2005), *Physica B*, **356**, 1.
- Toperverg B., Vorobyev A., Gordeev G., Lazebnik A., Rekveldt Th. and Kraan W. (1999), *Physica B*, **267 – 268**, 203.
- Toperverg B.P. and Zabel H. (2015), Neutron Scattering in Nanomagnetism, *Experimental Methods in Physical Sciences*, **48**, 339.
- Van Hove (1954), *Phys. Rev.*, **95**, 249.
- Van Hove (1954), *Phys. Rev.*, **95**, 1374.

Van Hove (1958), *Physica*, **24**, 404.

Te Velthuis S.G.E., Felsher G.P., Blomquist P. and Wäppling R. (2001), *J. Phys.: Cond. Matter*, **13**, 5577.

Werner S.A., Kaiser H., Arit M. et al. (1988), *Physica B*, **151**, № 1 – 2, 22.

Wick G.C. (1937), *Phys. Zs.*, **38**, 403; 689.

Williams W.G. (1988), *Polarized neutrons*, Oxford: Clarendon Press.

Zabel H., Theis-Bröhl and Toperverg B.P. (2007), Polarized Neutron Reflectivity and Scattering from Magnetic Nanostructures and Spintronic Materials, in *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials* (Eds. Kronmüller H. and Parkin S.) vol. 3, p.1.

## ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА К ЧАСТИ II

- Аксенов В.Л. (2009), *УФН*, **179**, 434.
- Аксенов В.Л., Ковальчук М.В. Ред. (2014), *Реакторный комплекс ПИК*, в 4-х томах, Гатчина: ПИЯФ НИЦ КИ.
- Аксенов В.Л., Балагуров А.М., Козленко Д.П. (2016), *Физика ЭЧАЯ*, **47(4)**, 1154.
- Аксенов В.Л., Ананьев В.Д., Комышев Г.Г., Рогов А.Д., Шабалин Е.П. (2017), *Письма в ЭЧАЯ*, **14(5)**, 556.
- Аксенов В.Л., Рзянин М.В., Шабалин Е.П. (2021), *Физика ЭЧАЯ*, **52** (6), 1349.
- Александров Ю.А., Шарапов Э.И., Чер Л. (1981), *Дифракционные методы в нейтронной физике*, М.: Энергоиздат.
- Ананьев В.Д., Блохинцев Д.И., Букаев П.В. и др. (1969), *Импульсный реактор с инжектором ИБР-2*, Сообщения ОИЯИ, 13-4392, Дубна.
- Ананьев В.Д., Беляков А.А., Булавин М.В. и др. (2014), *ЖТФ*, **84**, 131.
- Балагуров А.М., Бескровный А.И., Миронова Г.М., Поле А.В., Симкин В.Г. (2000), *Дифракционные исследования на реакторе ИБР-2 с использованием холодного источника нейтронов*, Сообщение ОИЯИ, РЗ-2000-220, Дубна.
- Балагуров А.М., Бобриков И.А., Бокучава Г.Д., Журавлев В.В., Симкин В.Г. (2015), *Физика ЭЧАЯ*, **46**, 453.
- Бать Г.А., Коченов А.С., Кабанов Л.П. (1985), *Исследовательские ядерные реакторы*, М.: Энергоатомиздат.
- Бунаков В.Е., Краснов Л.В. (2014), *Нейтронная физика*, СПб: СПбГУ.
- Гундорин Н.А., Назаров В.М. (1980), *Эффективный замедлитель для импульсных источников нейтронов*, Сообщение ОИЯИ, РЗ-80-721, Дубна.
- Гуревич И.И. и Тарасов Л.В. (1965), *Физика нейтронов низких энергий*, М.: Наука.
- Драбкин Г.М., Забидаров Е.И., Касман Я.А., Окороков А.И. (1969), *ЖЭТФ*, **56**, 478.
- Ерыкалов А.Н., Каминкер Д.М., Коноплев К.А., Петров Ю.В., Соколов В.М. (1966), *Физика ядерных реакторов*. Сборник статей, **3**, 273 – 280, Мелекес: НИИАР – ФЭИ.
- Ерыкалов А.Н., Колесниченко О.А., Коноплев К.А., Назаренко В.А., Петров Ю.В., Смольский С.Л. (1992), *Реактор ПИК*, ПИЯФ РАН, препринт № 1784, С.-Петербург: ЛИЯФ.
- Игелстафф П. (ред.) (1970), *Рассеяние тепловых нейтронов*, М.: Атомиздат.

- Калашников В.И., Козодаев М.С. (1966), *Детекторы элементарных частиц*, М.: Наука.
- Ковальчук М.В., Аксенов В.Л., Коноплев К.А., Захаров А.С., Самсонов В.М., Смольский С.Л., Драгунов А.В., Лопаткин А.В., Третьяков И.Т., Каутбеков З.П. (2013), *ВАНТ, сер. Обеспечение безопасности АЭС, Исследовательские реакторы*, вып. 33, 24 – 36.
- Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. (1988), *Механика*, М.: Наука.
- Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. (2002), *Статистическая физика*, М.: Физматлит.
- Лушиков В.И., Таран Ю.В., Шапиро Ф.Л. (1969), *Ядерная физика*, **10**, 1178.
- Малеев С.В. (1961), *ЖЭТФ*, **40**, 1224.
- Малеев С.В. (1965), *Письма в ЖЭТФ*, **2**, 545.
- Малеев С.В. (2002), *УФН*, **172**, 617-646.
- Никитенко Ю.В., Сыромятников В.Г. (2013), *Рефлектометрия поляризованных нейтронов*, М.: Физматлит.
- Нозик Ю.З., Озеров Р.П., Хениг К. (1979), *Структурная нейтронография*, М.: Атомиздат.
- Окороков А.И., Рунов В.В., Драбкин Г.М. (1972), Авторское свидетельство 408247.
- Окороков А.И. и др. (1975), *ЖЭТФ*, **69**, 590.
- Таран Ю.В., Шапиро Ф.Л. (1963), *ЖЭТФ*, **44**, 2185.
- Таран Ю.В. (1975), *Быстрый адиабатический переворот спина нейтрона*, Сообщение ОИЯИ, РЗ-8577, Дубна.
- Турчин В.Ф. (1963), *Медленные нейтроны*, М.: Госатомиздат.
- Франк И.М. (1972), *Физика ЭЧАЯ*, **2**, 805.
- Шабалин Е.П. (1976), *Импульсные реакторы на быстрых нейтронах*, М.: Атомиздат.
- Шабалин Е.П., Куликов С.А. (2004), *Холодный замедлитель нейтронов на основе ароматических углеводов*, Сообщение ОИЯИ, Р13-2004-73, Дубна.
- Шабалин Е.П. (2005), *Физика ЭЧАЯ*, **36**, 1425.

Шабалин Е.П., Аксенов В.Л., Комышев Г.Г., Рогов А.Д. (2018), *Атомная энергия*, **124**, 309.

Шафранов М.Д. (2002), *Физика ЭЧАЯ*, **33**, 1204.

Эм В.Т., Балагуров А.М., Глазков В.П., Карпов И.Д., Mikula P., Мирон Н.Ф., Соменков В.А., Сумин В.В., Saoun J., Шушунов М.Н. (2017), *ПТЭ*, **4**, 75.

Aksenov V.L., Balagurov A.M., Simkin V.G., Bulkin A.P., Kudrjashev V.A., Trounov V.A., Antson O., Hiismaki P., Tiitta A. (1997), *J. of Neutron Research*, **5**, 181.

Alberi J., Fischer J., Radeka V., Rogers L.C., Schoenborn B. (1975), *Nucl. Instr. Meth.*, **127**, 507.

Balagurov A.M., Gordeliy V.I., Ishmukhametov M.Z., Novozhilov V.E., Savenko B.N., Shibaev V.D. (1982), *Nucl. Instr. Meth.*, **193**, 617.

Bokuchava G. (2018), *Crystals*, **8**, 318.

Carpenter J.M. (1967), *Nucl. Instr. Meth.*, **47**, 179.

Day D.H., Sinclair R.N. (1969), *Nucl. Instr. Meth.*, **72**, 237.

Drabkin G.M., Okorokov A.I., Schebetov A.F., Borovikova N.V., Gukasov A.G., Kudriashov V.A., Runov V.V., Korneev D.A. (1976), *Nucl. Instr. Meth.*, **133**, 453.

Eder O.J., Kunsch B., Westphal G.P. (1977), *Nucl. Instr. Meth.*, **141**, 533.

Fischer P., Frey G., Koch M., Konnecke M., Pomjakushin V., Schefer J., Thut R., Schlumpf N., Burge R., Greuter U., Bondt S., Berruyer E. (2000), *Physica B*, **276-278**, 146.

Fraser G.W., Pearson J.F. (1990), *Nucl. Instr. Meth. Phys. Research*, **A293**, 569.

Goldberger M., Seitz F. (1947), *Phys. Rev.*, **71**, 294.

Halpern O. and Johnson M.H. (1939), *Phys. Rev.*, **55**, 898.

Hewat A.W., Bailey I. (1976), *Nucl. Instr. Meth.*, **137**, 463.

Hiismaki P., Trounov V.A., Antson O., Kudryashev V.A., Kukkonen H., Poyry H., Shchebetov A.F., Tiitta A., Ulyanov V.A. (1985), *Neutron Scattering in The 'Nineties*, Conf. Proc. **IAEA-CN-46**, Vienna, IAEA, 453.

Hoffman J.G., Livingston M.S., Bethe H.A. (1937), *Phys. Rev.*, **51**, 214.

Holas A., Holas J., Maliszewski E., Sedlakova L. (1969), *Nucl. Instr. Meth.*, **69**, 173.



- Ikeda S., Carpenter J.M. (1985), *Nucl. Instr. Meth. A*, **239**, 536.
- Knoll G.F. (2010), *Radiation detection and measurement*, 4rd ed., John Wiley & Sons.
- Korneev D.A. (1980), *Nucl. Instr. Meth.*, **169**, 65.
- Maier-Leibnitz H., Springer T. (1963), *J. Nuclear Energy. Parts A/B. Reactor Science and Technology*, **17**, 217.
- Mezei F. (1972), *Z. Physik*, **255**, 146.
- Mezei F. (1994), *Neutron News*, **5**(3), 2.
- Mezei F. (1997), *J. Neutron Res.*, **6**, 3.
- Mikula P., Kulda J., Lukáš P., Vrána M., Wagner V. (1994), *Nucl. Instr. and Meth. A.*, **338**, 18.
- Moon B.H., Riste T. and Koehler W.C. (1969), *Phys. Rev.*, **181**, 920.
- Nathans R., Shull C.G., Shirane G., Andresen A. (1959), *J. Phys. Chem. Solids*, **10**, 138.
- Oed A. (1988), *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **A263**, 351.
- Ollivier J., Mutka H., Didier L. (2010), *Neutron News*, **21**(2), 22.
- Pleshanov N.K. (2014), *J. Physics: Conf. Ser.*, **528**, 012023 (19).
- Pleshanov N.K., Syromyatnikov V.G. (2016), *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. A*, **837**, 40.
- Radeka V. (1974), *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **NS-21**, 51.
- Rucker U., Cronert T., Voigt J. et al. (2016), *Eur. Phys. J. Plus*, **131**, 19.
- Schober H. et al. (2008), *Nucl. Instr. Meth. A*, **589**, 34.
- Stanford C.P., Stephenson T.E., Cochran L.W. and Bernstein S. (1954), *Phys. Rev.*, **94**, 374.
- Stewart J.R. et al. (2006), *Physica B*, **385-386**, 1142.
- Stuhr U. (2005), *Nucl. Instr. Meth. A*, **545**, 319.
- Tremsin A.S., Vallergera J.V., McPhate J.B., Siegmund O.H.W., Hull J.S., Feller W.B., Crow L., Cooper R.G. (2008), *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, **A592**, 374.
- Williams W.G. (1988), *Polarized neutrons*, Oxford: Clarendon Press.

**ЦИТИРУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА К ЧАСТИ III**

Авдеев М.В. (2007), *УФН*, **177**, 1139.

Авдеев М.В., Аксенов В.Л. (2010), *УФН*, **180**, 1009.

Авдеев М.В., Боднарчук В.И., Петренко В.И., Гапон И.В., Томчук А.В., Нагорный А.В., Ульянов В.А., Булавин Л.А. и Аксенов В.Л. (2017), *Кристаллография*, **62**, №6, 1002.

Аксенов В.Л., Балагуров А.М. (2016), *УФН*, **186**, 293.

Аксенов В.Л., Жерненко К.Н., Кожевников С.В., Лаутер Х., Лаутер-Пасюк В., Никитенко Ю.В. и Петренко А.В. (2004), *Спектрометр поляризованных нейтронов РЕМУР на импульсном реакторе ИБР-2*, Сообщения ОИЯИ, Д13-2004-47, Дубна: ОИЯИ.

Аксенов В.Л., Тропин Т.В. (2020), *Лекции по теории конденсированного состояния*, М.: Физический факультет МГУ имени М.В.Ломоносова.

Алексеев П.А., Менушенков А.П. (2012), *Нейтронные методы в физике конденсированного состояния*, Учебное пособие. М., НИЯУ МИФИ.

Асланов Л.А., Треушников Е.Н. (1985), *Основы теории дифракции рентгеновских лучей*, М.: Изд. МГУ.

Ахиезер А.И., Померанчук И.Я. (1950), *Некоторые вопросы теории ядра*, Изд. технико-теоретической лит.:, Москва.

Балагуров А.М. (2017), *Дифракция нейтронов для решения структурных и материаловедческих задач*, Учебное пособие, Физфак МГУ им. М.В.Ломоносова.

Балагуров А.М., Миронова Г.М. (1991), *Кристаллография*, **36**, 314.

Боднарчук В.И., Булкин А.П., Кравцов Е.А., Плешанов Н.К., Сыромятников В.Г. и Ульянов В.А. (2022), *Кристаллография*, **67**, №1, 50.

Брандт Н.Б. и Кульбачинский В.А. (2007), *Квазичастицы в физике конденсированного состояния*, М: Физматлит.

Брокхауз Б.Н. (1995), *УФН*, **165**, 1381.

Вайнштейн Б.К. (1979), *Современная кристаллография*, т.1, М.: Наука.

Воронов Б.И., Гладких И., Лузанов Н.И., Кунченко А.Б., Останевич Ю.М., Хорват И., Чер Л. (1976), *Спектрометр для исследования малоуглового рассеяния нейтронов по методу времени пролета*, Сообщение ОИЯИ 14-9451, Дубна.

- Гинье А. (1961), *Рентгенография кристаллов*, М.: Физматлит.
- Гуревич И.И. и Тарасов Л.В. (1965), *Физика нейтронов низких энергий*, М.: Наука.
- Иванкина Т.И., Маттис З. (2015), *Физика ЭЧАЯ*, **46**, 664.
- Игелстафф П. (ред.) (1970), *Рассеяние тепловых нейтронов*, М.: Атомиздат.
- Изюмов Ю.А., Найш В.Е., Озеров Р.П. (1981), *Нейтроннография магнетиков*, М.: Атомиздат.
- Изюмов Ю.А., Черноплеков Н.А. (1983), *Нейтронная спектроскопия*, М.: Атомиздат.
- Калоян А.А., Коваленко Е.С., Пахневич А.В., Подурец К.М., Рожнов С.В., Соменков В.А. (2014), *Поверхность. РСНИ*, **11**, 5.
- Киттель Ч. (1978), *Введение в физику твердого тела*, М.: Наука.
- Козленко Д.П., Кичанов С.Е., Лукин Е.В., Руткаускас А.В., Белушкин А.В., Бокучава Г.Д., Савенко Б.Н. (2016), *Письма в ЭЧАЯ*, **13**, 550.
- Лавси С., Шпрингер Т. (ред.) (1980), *Динамические свойства твердых тел и жидкостей. Исследования методом рассеяния нейтронов*, М.: Мир.
- Мандель Л. и Вольф Э. (2000), *Оптическая когерентность и квантовая оптика*, Пер с англ., М.: Физматлит.
- Никитенко Ю.В., Сыромятников В.Г. (2013), *Рефлектометрия поляризованных нейтронов*, М.: Физматлит.
- Никитин А.Н. (2010), *Анизотропия текстуры материалов*, Курс лекций, Физфак МГУ им. М.В.Ломоносова.
- Никова Е.С., Саламатов Ю.А., Кравцов Е.А., Макарова М.В., Проглядо В.В., Устинов В.В., Боднарчук В.И. и Нагорный А.В. (2019), *ФММ*, **120**, №9, 913.
- Нитц В.В., Папулова З.Г., Сосновска И., Сосновски Е. (1964), *ФТТ*, **6**, 1370.
- Нитц В.В. (2001), *Физика ЭЧАЯ*, **32**, 846.
- Нозик Ю.З., Озеров Р.П., Хениг К. (1979), *Структурная нейтроннография*, М.: Атомиздат.
- Озеров Р.П. (1997), *УФН*, **167**, 541.
- Останевич Ю.М., Сердюк И.Н. (1982), *УФН*, **137**, 85.

- Паршин П.П., Землянов М.Г., Солдатов П.И. (1991), *ЖЭТФ*, **101**, 750.
- Пирогов А.Н., Сёмкин М.А. (2020), *Структурная и магнитная нейтронография*, Учебное пособие, Екатеринбург, Уральский университет.
- Подурец К.М., Соменков В.А., Шильштейн С.Ш. (1989), *ЖТФ*, **59**, 115.
- Рунов В.В., Ильин Д.С., Рунова М.К., Раджабов А.К. (2012), *Письма в ЖЭТФ*, **95**, 530.
- Сапрыкина И.А., Кичанов С.Е., Козленко Д.П. (2019), *Кристаллография*, **64**, 152.
- Свергун Д.И., Фейгин Л.А. (1986), *Рентгеновское и нейтронное малоугловое рассеяние*, М.: Наука.
- Сердюк И., Заккаи Н., Заккаи Дж. (2010), *Методы в молекулярной биофизике. Том 2*, М.: КДУ.
- Соменков В.А. (2017), *ВАНТ*, **3**, 24.
- Турчин В.Ф. (1963), *Медленные нейтроны*, М.: Госатомиздат.
- Шаскольская М.П. (1976), *Кристаллография*, М.: Высшая школа.
- Шапиро Ф.Л. (2015), *Нейтронные исследования*, М.: Наука.
- Шубников А.В. (1951), *Симметрия и антисимметрия конечных фигур*, Москва.
- Юз Д. (1955), *Нейтронная оптика*, М.: ИЛ.
- Agamalian M., Heroux L., Littrell K.C., Carpenter J.M. (2018), *J. of Phys.: Conf. Series*, **1021**, 012033 (1-6).
- Aksenov V.L., Nikitenko Yu.V., Proglyado V.V., Andreeva M.A., Kalska B., Haggstrom L., Wappling R. (2003), *JMMM*, **258-259**, 332.
- Alefeld B., Schwan D., Springer T. (1989), *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **A274**, 210.
- Andersen I.S., MacGreevy R.L., Bilheux H.Z. (Ed-s.) (2009), *Neutron imaging and application. A reference for the imaging community*, Springer.
- Avdeev M. (2007), *J. Appl. Cryst.*, **40**, 56.
- Bacon G.E., Lonsdale K. (1953), *Rep. Prog. Phys.*, **16**, 1.

- Bacon G.E. (Ed.) (1986), *Fifty years of neutron diffraction*, Adam Hilger, Bristol.
- Balagurov A.M., Golovin I.S., Bobrikov I.A., Palacheva V.V., Sumnikov S.V., Zlokazov V.B. (2017), *J. Appl. Cryst.*, **50**, 198.
- Bertaut E.F. (1968), *Acta Cryst.*, **A24**, 217.
- Birsan M., Szpunar J.A., Tun Z., Root J.H. (1996), *Phys. Rev. B*, **53**, 6412.
- Bokuchava G. (2018), *Crystals*, **8**, 318 (1-26).
- Buras B., Leciejewicz J. (1963), *Nucleonika*, **8**, 75.
- Buras B., Leciejewicz J., Sosnowska I., Sosnowski J., Shapiro F.L. (1964), *Nucleonika*, **9**, 523.
- Cagliotti G., Paoletti A., Ricci F.P. (1958), *Nucl. Instrum.*, **3**, 223.
- Carpenter J.M. and Loong C.-K. (2015), *Elements of slow-neutron scattering*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, UK.
- Em V.T., Karpov I.D., Somenkov V.A., Galzkov V.P., Balagurov A.M., Sumin V.V., Mikula P., Saroun J. (2018), *Physica B*, **551**, 413.
- Furrer A., Mesot J. and Strassle T. (2009), *Neutron scattering in condensed matter Physics*, World Scientific.
- Giacovazzo C. (Ed.) 2011, *Fundamentals of Crystallography*, IUCr / Oxford University Press.
- Guinier A., Fournet G. (1955), *Small angle scattering of X-Rays*, New York.
- Halpern O., Gerjuoy E. (1949), *Phys. Rev.*, **76**, 1117.
- Hansen T.C., Henry T.C., Fischer H.E., Torregrossa J., Convert P. (2008), *Meas. Sci. Technol.*, **19**, 034001 (1-6).
- Hughes D.J., Buegy M.T., Heller R.B., Wallace J.W. (1949), *Phys. Rev.*, **71**, 565.
- Hutchings M.T., Withers P.J., Holden T.M., Lorentzen T. (2005), *Introduction to the Characterization of Residual Stress by Neutron Diffraction*, London: Taylor and Francis.
- Kardjilov N., Manke I., Strobl M., Hilger A., Treimer W., Meissner M., Krist T., Banhart J. (2008), *Nature Phys.*, **4**, 399.

- Kardjilov N., Manke I., Hilger A., Strobl M., Banhart J. (2011), *Materials Today*, **14**, 248.
- Kisi E.H. and Howard J. (2008), *Applications of Neutron Powder Diffraction*, Oxford University Press.
- Lauter H.J.C., Lauter V., Toperverg B.P. (2012), *Reflectivity, Off-Specular Scattering, and GI-SAS: Neutrons*. In: *Polymer Science: A Comprehensive Reference*, **2**, 411, Amsterdam: Elsevier BV.
- Lehmann E.H. (2009), *Neutron Imaging Methods and Applications*, Chapter 11 in *Neutron applications in Earth, Energy and environmental sciences*, L. Liyuan, R. Rinaldi, H. Schober (Ed-s.), Springer.
- Lehmann E.H., Frei G., Vontobel P., Josic L., Kardjilov N., Hilger A., Kockelmann W., Steuer A. (2009), *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. A*, **603**, 429.
- Lutterotti L., Matthies S., Wenk H.-R., Schultz A.J., Richardson J.W. (1997), *J. Appl. Phys.*, **81**, 594.
- Lynn J.W., Smith H.G., Nicklow R.M. (1973), *Phys. Rev. B*, **8**, 3493.
- Majkrzak Ch.F., Carpenter E., Heinrich F. and Berk F. (2011), *J. Appl. Phys.*, **110**, 102212-1-14.
- Mannes D., Lehmann E., Masalles A., Schmidt-Ott K., Przychowski A.V., Schaeppi K., Schmid F., Peetermans S., Hunger K. (2014), *Insight*, **56**, 137.
- McQueeney R.J., Yethiraj M., Chang S., Montfrooij W., Perring T.G., Honig J.M., Metcalf P. (2007), *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 246401 (1-4).
- Mezei F. (1979), *Nucl. Instr. Meth.*, **164**, 153.
- Mezei F. (1982), *Neutron spin echo and high-resolution inelastic spectroscopy*, IV школа по нейтронной физике, ДЗ,4-82-704, ОИЯИ, Дубна, 514-529.
- Michels A., Malyeyev A., Titov I., Honecker D., Cubitt R., Blackburn E., Suzuki K. (2020), *IUCrJ*, **7**, 136.
- Mittemeijer E.J., Welzel U. (2008), *Z. Kristallogr.*, **223**, 552.
- Mittemeijer E.J., Welzel U. (Ed-s) (2013), *Modern Diffraction Methods*, Wiley-VCH Verlag & Co. KGaA.
- Monkenbusch M., Richter D. (2007), *C. R. Physique*, **8**, 845.

- Pecharsky V.K., Zavalij P.Y. (2009), *Fundamentals of Powder Diffraction and Structural Characterization of Materials*, Springer.
- Pomjakushin V.Yu., Sheptyakov D.V., Conder K., Pomjakushina E.V., Balagurov A.M. (2007), *Phys. Rev. B*, **75**, 054410 (1-12).
- Rennie A.R. et al. (2013), *J. Appl. Cryst.*, **46**, 1289.
- Rennie A.R., (2020), *Neutron reflection and Neutron reflectometers*, <http://www.reflectometry.net>.
- Rietveld H.M. (1969), *J. Appl. Cryst.*, **2**, 65.
- Schwan D., Mikosovsky A., Rauh H., Seidl E., Zugarek G., (1985) *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **A239**, 229.
- Serdyuk I.N. (1995), *Physika B*, **213&214**, 892.
- Shirane G., Shapiro S., Tranquada J. (2002), *Neutron scattering with a triple-axis spectrometer*, Cambridge Univ. Press.
- Shull C.G., Wollan C.E., Morton G.A., Davidson W.L. (1948), *Phys. Rev.*, **73**, 842.
- Shull C.G., Smart J.S. (1949), *Phys. Rev.*, **76**, 1256.
- Sun L.Y., Vasin R.N., Islamov A.Kh., Bobrikov I.A., Balagurov A.M., Churyumov A.Y., Cheng W.C., Golovin I.S. (2020), *Materials Letters*, **275**, 128069 (1-3).
- Sun L.Y., Sumnikov S.V., Islamov A.Kh., Vasin R.N., Bobrikov I.A., Balagurov A.M., Cheng W.C., Churyumov A.Y., Golovin I.S. (2021), *JALCOM*, **853**, 157061 (1-10).
- Toperverg B.P. (2015), *Physics Metals and Metallography*, **116**, 1337.
- Torikai N. (2011), *Neutron Reflectometry*, In: *Neutrons in Soft Matter*. New Jersey: John Wiley & Sons Inc., 115.
- Ullemeyer K., Spalhoff P., Heinitz J., Isakov N.N., Nikitin A.N., Weber K. (1998), *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **A412**, 80.
- Vineyard G.H. (1958), *Phys. Rev.*, **110**, 999.
- Weiss R.J. (1951), *Phys. Rev.*, **83**, 379.
- Wenk H-R. (2013), *Texture analysis by advanced diffraction methods*, in «Modern Diffraction Methods» Edited by E.J. Mittemeijer, U. Welzel, Wiley-VCH, Singapur.
- Zlokazov V.B., Chernyshev V.B. (1992), *J. Appl. Cryst.*, **25**, 447.

**СПИСОК ОБОЗНАЧЕНИЙ** (указан параграф, где символ встречается впервые)

- БПИВ – борновское приближение искаженных волн; 8.3.2
- КЭП – кристаллическое электрическое поле; 6.4.1
- ЛПП – ларморовская псевдопрецессия; 7.4.2
- МР – модулятор реактивности; 9.2
- МУРН – малоугловое рассеяние; 3.4
- МУРН-СП – малоугловое рассеяние при скользящем падении; 3.2.3
- НЗР – незеркальное рассеяние; 15.4
- НСЭ – нейтронное спиновое эхо; 7.2.2
- ПДР – плотность длины рассеяния; 2.3
- ПЧД – позиционно-чувствительный детектор; 12.3
- РПН – рефлектометрия поляризованных нейтронов; 7.4
- СМ – стандартная модель; Введение
- СНВ – стоячие нейтронные волны; 7.5
- у.Ш. – уравнение Шредингера
- ФДВР – фурье-дифрактометр высокого разрешения, 3.3.1
- Фм – единица измерения длины ( $= 1.5 \cdot 10^{-15} \text{ м}$ ), 1.3.1
- ФСД – фурье стресс-дифрактометр; 13.4.3
- ЭДМ – электрический дипольный момент; 1.2.2
- $a$  – длина рассеяния на свободном ядре (длина рассеяния Ферми); § 2.2
- $B$  – магнитная индукция (средняя напряженность магнитного поля); § 6.1
- $b$  – длина рассеяния на связанном ядре; § 2.3
- $b_k$  – длина когерентного рассеяния; § 2.4.2
- $b_{нк}$  – длина некогерентного рассеяния; § 2.4.2
- $d_{hkl}$  – межплоскостное расстояние, § 11.4
- $d_n$  – электрический дипольный момент нейтрона § 1.2.2
- $E_0$  – энергия падающего нейтрона, 2.4.1
- $E_1$  – энергия рассеянного нейтрона, 2.4.1
- $E_i$  – энергия мишени до рассеяния, 2.4.1
- $E_f$  – энергия мишени после рассеяния, 2.4.1
- $F_n$  – поток нейтронов; § 1.4



- $f$  – амплитуда рассеяния; § 2.1  
 $g, g_n$  – вектор обратной решетки; 5.1.1  
 $g(\omega)$  – спектральная плотность частот колебаний; 5.1.1  
 $\hbar$  ( $= h/2\pi$ ) – постоянная Планка; Введение, § 2.1  
 $\vec{J}$  – плотность тока нейтронов; § 1.4  
 $\vec{k}$  – волновой вектор; § 2.1  
 $\vec{k}_0$  – волновой вектор падающего нейтрона; § 2.3  
 $\vec{k}_1$  – волновой вектор рассеянного нейтрона; § 2.3  
 $k_\infty$  – коэффициент размножения; 9.1.1  
 $k_{\text{эф}}$  – эффективный коэффициент размножения; 9.1.1  
 $m = m_n M / (m_n + M)$  – приведенная масса нейтрона; § 2.3  
 $m_e$  – масса электрона; § 1.1  
 $m_n$  – масса нейтрона; § 1.1  
 $m_p$  – масса протона; § 1.1  
 $n$  – плотность нейтронов; § 1.3  
     – векторная; § 1.4  
     – дифференциальная; § 1.4  
 $\vec{P}$  – вектор поляризации; § 7.1  
 $Q_L$  – фактор Лоренца, 13.3.5  
 $\vec{q} = \vec{k}_1 - \vec{k}_0$  – вектор рассеяния, переданный волновой вектор; § 2.3  
 $q_n$  – заряд нейтрона; 1.1  
 $R$  – амплитуда отражения, 3.2.2  
 $r_e = e^2/m_e c^2$  – классический электромагнитный радиус электрона; § 6.1  
 $\mathfrak{K}$  – коэффициент отражения; 7.4  
 $S_1$  – матрица рассеяния; § 2.2  
 $S$  – спин нейтрона, 1.1  
 $T$  – амплитуда пропускания (преломления), 3.2.2  
 $W_1(q)$  – фактор Дебая-Валлера; § 5.1  
 $\alpha_0$  – угол скольжения падающего пучка; § 3.2  
 $\alpha_1$  – угол скольжения отраженного пучка; § 3.2  
 $\beta_{\text{эф}}$  – эффективная доля запаздывающих нейтронов

- $\delta$  – сдвиг фаз; §2.2
- $\theta$  – угол рассеяния; §2.1
- $\theta_B$  – угол Брэгга (половина угла рассеяния); Введение, § 3.3
- $\Theta_D$  – температура Дебая; § 5.1.4
- $\Phi_n$  – полный интегральный поток (скалярный (в  $4\pi$ ) поток § 1.4.2
- $\Phi_v$  – флюенс нейтронов; §1.4.1
- $\varphi$  – азимутальный угол; § 2.1
- $\varphi_L$  – угол Ларморовой прецессии; § 7.2
- $\gamma_n = 2\mu_n/h$  – гиромагнитное отношение для нейтрона; § 7.7.1
- $\lambda = 2\pi/|\vec{k}| = h/mv$  ( $\lambda = \lambda/2\pi$ ) – длина волны; § 2.1
- $\mu_B = eh/2m_e c$  – магнетон Бора; § 1.1
- $\mu_N = eh/2m_p c$  – ядерный магнетон; § 1.1
- $\mu_n = \gamma\mu_N = -1.913 \mu_N$  – магнитный момент нейтрона; § 1.1
- $\sigma_a$  – сечение поглощения; § 2.1
- $\sigma_s$  – сечение рассеяния; § 2.1
- $\sigma_t$  – полное сечение; § 2.1
- $\tau_n$  – время жизни нейтрона; § 1.2.1
- $\Omega$  – телесный угол; § 2.1
- $\rho$  – реактивность системы; 9.1.1
- $\rho_s$  – плотность длины рассеяния (ПДР); § 2.3
- $h\omega = E_1 - E_0 = E_i - E_f$  – энергия рассеяния, переданная энергия; § 2.4.1
- $\omega_{kj}$  – частоты нормальных колебаний; 5.1.1
- $\omega_L = \gamma_n B$  – ларморова частота; §7.7.1

**ПРЕДМЕТНЫЙ УКАЗАТЕЛЬ**

- Автокорреляционная функция, 4.2  
Активная зона ядерного реактора, 9.1.1  
Амплитуда рассеяния, 2.1
- Базисные функции, 14.3.3  
Боголюбова принцип ослабления корреляций, 4.3  
Бозе-газ, 5.4.1  
Бозе-Эйнштейна конденсат, 5.4.1  
Браве решетка, 3.3.1  
Брэгга  
- геометрия, 3.3.1  
- угол, Введение  
Брэгга-Вульфа  
- условие, Введение  
Бустер, 9.3.1, 9.4
- Вектор**  
- аксиальный (псевдовектор), 7.1.2  
- рассеяния, 2.3  
Восприимчивость, 4.4.2  
Времени пролета метод, Введение  
Время жизни нейтрона, 1.1  
Вудса-Сакса потенциал, 1.3.1
- Геометрия аксиальная, щелевая, 14.2  
Геометрия обратная, 16.4.1  
Геометрия прямая, 16.4.2  
Гидродинамический приближение, 5.3.2  
Грина функция, 8.1  
- двухвременная термодинамическая, 4.4.2
- Дарвина столик, 14.4.3  
Дебая-Валлера фактор, 5.1.2  
Дебая формула, 3.4.2  
Дебая температура, 5.1.4  
Детекторы  
- одиночные, 12.2  
- позиционно-чувствительные, 12.3  
- широкоапертурные, 12.3  
Дирака уравнение, 6.1

- Дираковская частица, 6.1  
Дифрактометр двухосный, 13.4  
Дифрактометр по времени пролета, 13.4  
Дифрактометра разрешение, 13.4  
Дифрактометра светосила, 13.4  
Диффузионное движение в жидкости, 5.3.3
- Жидкость магнитная**, 14.5
- Замедлитель**  
- комбинированный, 10.4  
- несвязанный, 10.4  
- связанный, 10.4  
Заряд нейтрона, 1.1
- Импульс передачи**, 68  
Импульс нейтронов, 10.4  
Импульсное приближение, 4.3  
Интенсивность интегральная, 13.3  
Интерференции функция, § 3.3.1  
Испарение нейтронов, 9.1.1  
Исследовательский ядерный реактор, 9.1.1
- Камера пропорциональная**, 12.3  
Квазиимпульс фонона, 16.2  
Квазикристаллическая модель жидкости, 5.3.2  
Киссига бахрома, 3.2.1  
Когерентности длина, площадь, объем, 15.3  
Контраст, 3.4.1  
Контраста вариация, 3.4.1  
Корреляционная функция, 4.2  
Коэффициент размножения нейтронов, 9.1.1  
Кривая дисперсионная, 16.2  
Критическая масса, 9.1.1  
Кубо  
- формулы, 4.4.2  
- функция релаксации, 4.4.2
- Ларморова частота**, 7.2  
**Лауэ**  
- геометрия, 3.3.2  
- уравнение, 3.3.1

- функция, 13.3
- Леви-Чивита тензор, 7.1.2
- Лоренца фактор, 13.3.5
  
- Магнитное рассеяние**
  - интерференционное, 6.3
  - оператор, 6.3
- Магнитный момент нейтрона, 1.1
- Магнитный формфактор атома, 6.2
- Магنون, 6.3
- Максвелла распределение, 10.1
- Максон, 5.4.1
- Масса нейтрона, 1.1
- Матрица рассеяния, 2.2
- Мертвое время детектора, 12.2
- Микроканальная пластина, 12.6
- Миллера индексы, 13.3.3
- Многофононное рассеяние; 5.1.2
- Модулятор реактивности (МР), 9.2
- Монохроматор
  - механический, 11.5
  - фокусирующий, 11.4
- Мягкая мода, 5.2
  
- Напряжения механические, 13.5.6**
- Нейтрино, 1.2.1
- Нейтроновод
  - баллистический, 11.3
  - зеркальный, 11.3
- Нейтроны
  - быстрые, Введение
  - запаздывающие, 9.1.1
  - классификация, Введение
  - медленные, Введение
  - мгновенные, 9.1.1
  - надтепловые, Введение
  - очень холодные, Введение
  - промежуточные, Введение
  - резонансные, Введение
  - тепловые, Введение
  - очень холодные, Введение
  - холодные, Введение

- ультрахолодные, Введение
- Нейтронная
  - оптика, Введение
  - спектроскопия, 16.1
- Нейтронный генератор, 9.3
- Нейтроннография, Введение
  - магнитная, часть 3, вступление
  - структурная, часть 3, вступление
- Неэргодичности константа, 4.4.1
  
- Обратное пространство, 5.1.1**
- Однофононое рассеяние; 5.1.2
- Оптическая теорема для рассеяния, 2.1
- Оптический потенциал, 3.1
- Отражение
  - амплитуда, 3.2.2
  - коэффициент, 3.2.2
  - полное, 3.1
- Отражение поляризованных нейтронов
  - без переворота спина, 7.4
  - с переворотом спина, 7.4
  
- Параметр порядка, 5.2**
- Паттерсона функция, 4.3
- Паули матрицы, 6.1
- ПЗС матрица, 12.6
- Плачека поправки, 4.3
- Плоскость кристаллографическая, 13.3.2
- Плотность длины рассеяния, 2.3
- Плотность нейтронов
  - векторная, 1.4.2
  - дифференциальная, 1.4.2
- Поглощения фактор, 13.3.5
- Полное отражение, 3.1
- Порода
  - закон, 3.2.2, 3.4.4
  - интеграл (инвариант), 3.4.3
- Потенциал Вудса-Сакса, 1.3.1
- Поток нейтронов
  - векторный, 1.4.2
  - дифференциальный, 1.4.2
  - импульсный, 10.2

- полный интегральный, 10.2
- - векторный (в  $2\pi$ ), 1.4.2
- - скалярный (в  $4\pi$ ), 1.4.2
- Преломление
  - амплитуда, 3.2.2
  - показатель (коэффициент), 3.1
- Прерыватель
  - статистический, 11.5
  - Ферми, 11.5
  - Фурье, 11.5
- Простые жидкости, 5.3
  
- Радиальная функция распределения, 5.3
- Радиационный захват, 1.3.2
- Разрешения функция, 13.3
- Рассеяние нейтронов
  - абсолютно упругое, 2.1
  - глубоко неупругое, 4.3
  - комптоновское, 5.4.2
  - неупругое, 1.4.1
  - полное, 4.3
  - потенциальное, 1.3.2
  - резонансное, 1.3.2
  - упругое, 1.4.1
  - упругое резонансное, 1.3.2
- Рассеяния
  - вектор, 2.3
  - плотность длины, 2.3
  - энергия, 2.4.1
- Реакторы пульсирующие, 9.2
- Реакторы ядерные, 9.1.1
- Рефлектометрия трехмерная, 15.3
- Решетка обратная, 13.3
- Ритвельда метод, 13.5.2
- Ротон, 5.4.1
  
- Светимость, 1.4.2
- Селектор скоростей Ферми, 11.5
- Сечение
  - макроскопическое, 14.2
  - поглощения, 2.1
  - рассеяния, 2.1

- Симметрия кристаллов, 13.3  
Снеллиуса закон, 3.1  
Соллеровский коллиматор, 11.1  
Составное ядро, 1.3.2  
Состояния  
- смешанные, 7.1.1  
- чистые, 7.1.1  
Спектр реакторный, 10.1  
Спектр эффективный, 13.3.5  
Спектральная плотность частот колебаний, 5.1.1  
Спектрометр трехосный, 16.1  
Спин, 7.1  
Спин нейтрона, 1.1  
Спинор, 7.1.1  
Спиновое эхо нейтронное, 7.2.2  
Спин-флиппер, 11.7.2  
Стандартная модель элементарных частиц, Введение  
Стоячие нейтронные волны, 7.5  
Статическое приближение, 4.3  
Структурный фактор, 3.3.1  
Суперзеркало, 11.3  
Сфера ограничения, 13.4.2  
Сфера отражения, 3.3.2
- Теория рассеяния  
- нестационарная, 8.1  
- стационарная, 8.1  
Тепловыделяющий элемент (твэл), 9.1.1  
Термализация нейтронов, 1.4.4  
Ток нейтронов, 1.4.2  
Транспорта (распространения) нейтронов теория, 1.4.3
- Ф**азовая проблема, 13.3.3  
Фактор структурный, 3.3.1  
Ферми  
- формула, 3.1  
Флюенс нейтронов, 1.4.2  
Фокусировка геометрическая, 12.5  
Фонон, 5.1.4  
Формулы рассеяния основные обобщенные, 4.1  
Формфактор частицы, 3.4.2  
Формфактор атома магнитный, 6.2



**Центральный пик**, 5.2

Эвальда сфера, 13.4.2

Экстинкция, 3.3.3

Электрона классический радиус, 6.1

Энергия рассеяния (передачи), 2.4.1

Эргодические системы, 4.3

**Ядерный реактор**

-быстрый (на быстрых нейтронах), Введение

-промежуточный (на резонансных нейтронах), Введение

-тепловой (на тепловых нейтронах), Введение

Яркость источника, 1.4.2