

48-я школа ПИЯФ ФКС - 2014



11 марта 2014

Обзор современных методик неупругого рассеяния нейтронов, спектрометры реактора ПИК



Е. Клементьев

Институт ядерных исследований РАН



*Национальный исследовательский центр
"Курчатовский институт"*

*Национальный исследовательский ядерный
университет МИФИ*



неупругое рассеяние нейтронов = НРН = нейтронная спектроскопия

=

inelastic neutron scattering = INS

О чем будет рассказано?

Нейтронная спектроскопия и ее роль в физике конденсированного состояния

- закон (функция) нейтронного рассеяния
- квазичастицы
- конкуренция НРН с прочими типами спектроскопии

Типы спектрометров

- времяпролетные спектрометры (TOF)
 прямая и обратная геометрии
- трехосные спектрометры (TAS)
 классические и с мультиплицированием
- гибридные спектрометры
- спектрометры обратного рассеяния
- спин-эхо спектрометры

Нейтронная спектроскопия на ПИКе

- ПИК в конкурентной среде
- “неупругие” приборы первой очереди на реакторе ПИК (планы)

Литература о квазичастицах и методах НРН

Н.Б. Бранд, В.А. Кульбачинский, **“Квазичастицы в физике твердого тела”**,
М., Физматлит, 2005

H. Schober, **“Neutron instrumentation”**, Ch. 3 in Neutron applications in Earth,
energy and environmental sciences ed. L. Liang et al., Springer Publ., 2009

F. Hippert, E. Geissler, J.-L. Hodeau, E. Lelievre-Berna, J.-R. Regnard eds.,
“Neutron and X-ray spectroscopy”, Springer Publ., 2006

SNS ORNL tutorials

ESS presentations, ILL, ISIS, SNS, JSNS webpages

Архив лекций ПИЯФ по ФКС

Исторические вехи нейтронной спектроскопии

1932 - Открытие нейтрона, мизерные нейтронные потоки

1952 - Рождение метода, появление интенсивных нейтронных пучков

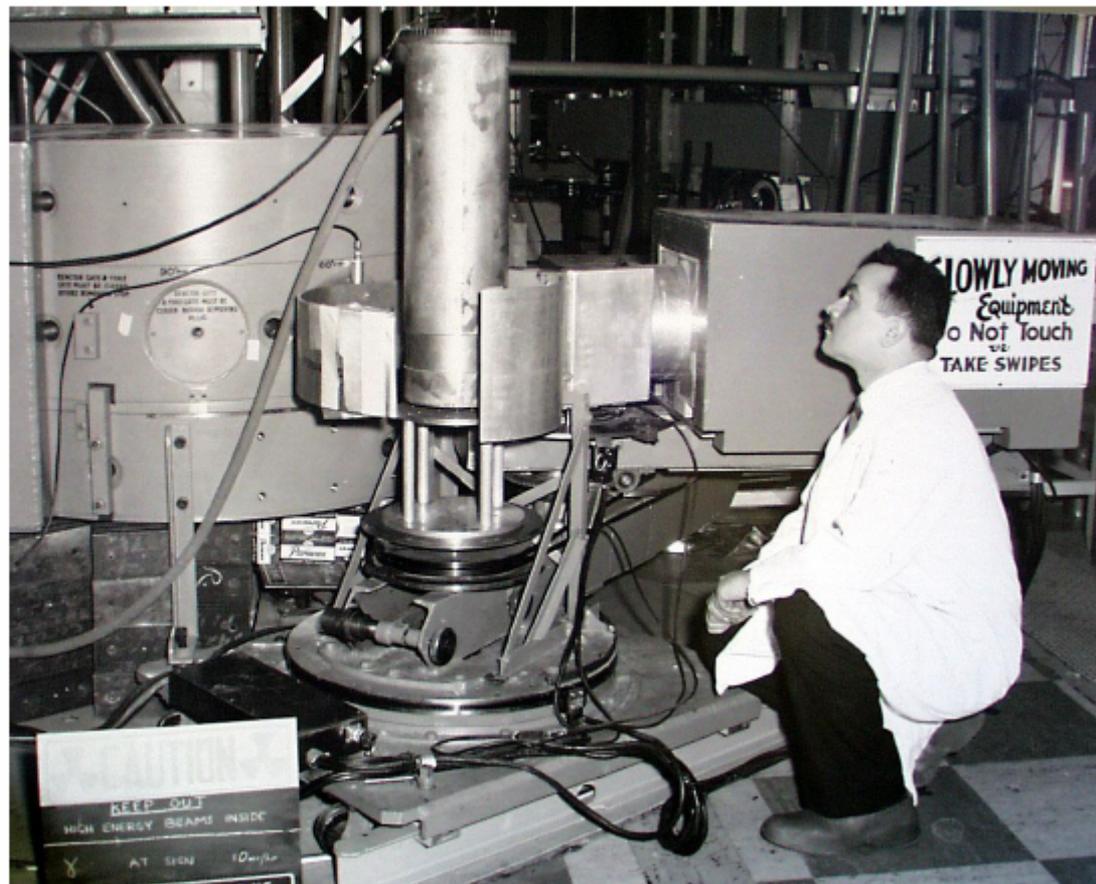
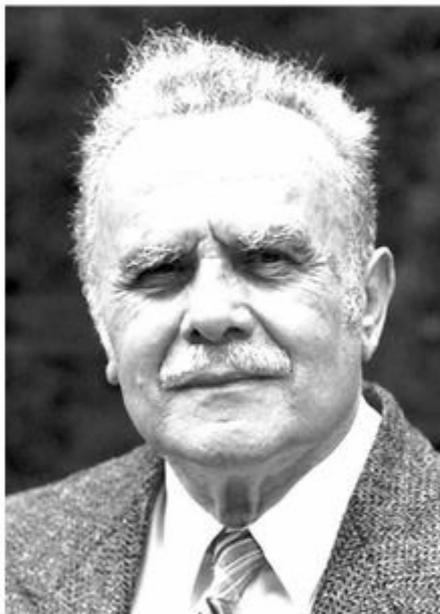
1970 - Нейтронная спектроскопия становится продуктивным экспериментальным методом

1994 - Нобелевская премия по физике присуждена за:

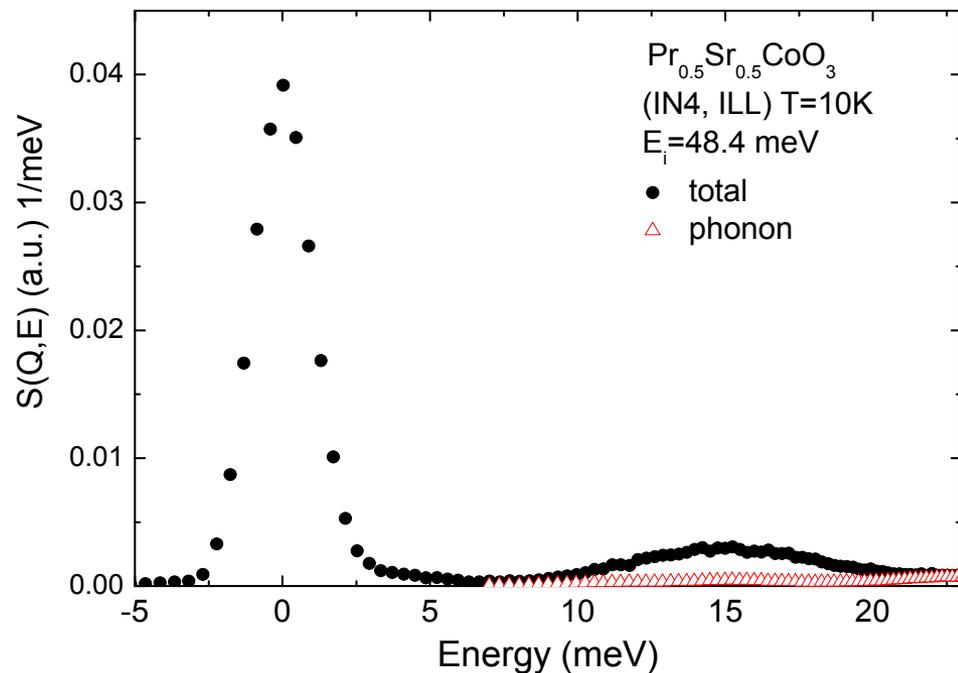
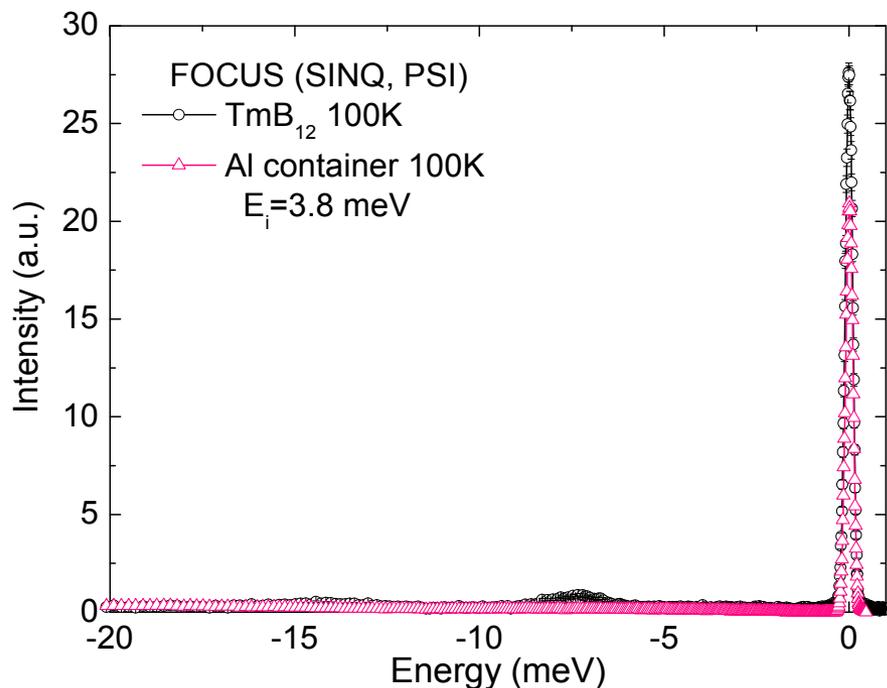
"for the development of neutron spectroscopy"

Основатель методики

Bertram N. Brockhouse



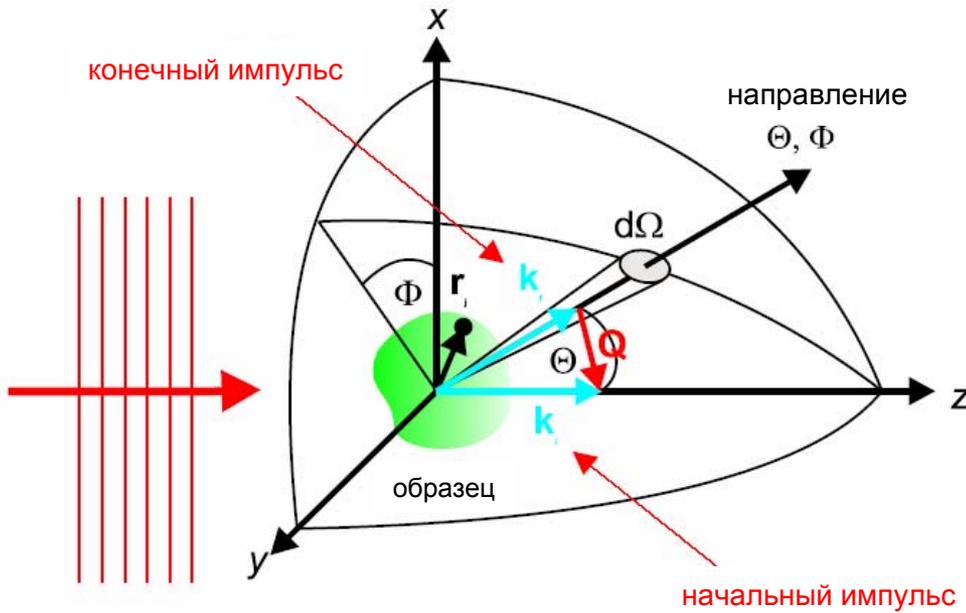
Неупругое рассеяние нейтронов в сопоставлении с упругим



упругий вклад, как правило, доминирует

(исключение - системы на основе $4f$ элементов с магнитными моментами $\sim 10 \mu_B$, некрамерсовские ионы)

Дважды дифференциальное сечение рассеяния нейтронов



Закон сохранения

$$\vec{Q} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$$

$$\hbar \omega = E_i - E_f$$

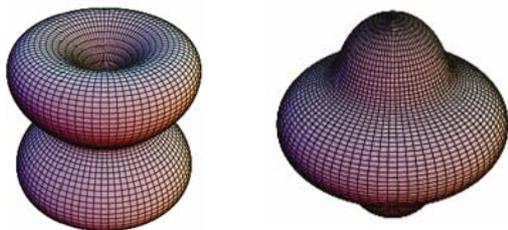
Полное сечение рассеяния

$$\sigma = \int d\Omega \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right) = \int d\Omega \int dE_f \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_f} \right)$$

дважды дифференциальное сечение рассеяния

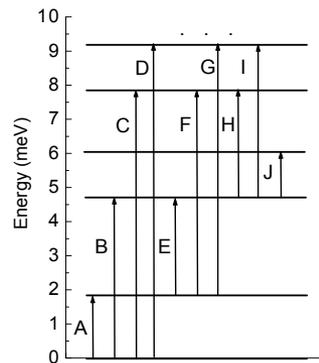
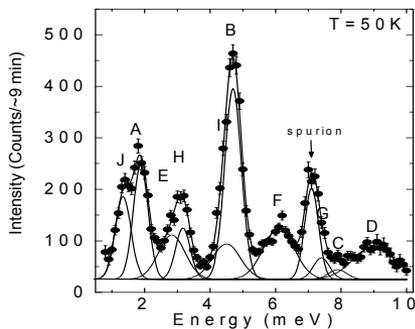
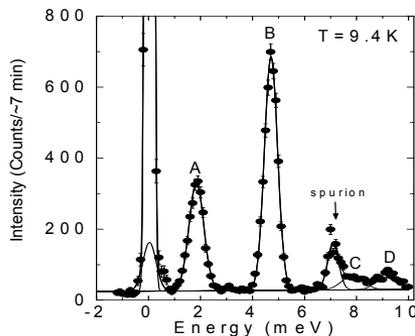
$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_f} = \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \frac{k_f}{k_i} \sum_{\lambda_i} p_{\lambda_i} \sum_{\lambda_f} |\langle \mathbf{k}_f, \lambda_f | \check{U} | \mathbf{k}_i, \lambda_i \rangle|^2 \delta(E_{\lambda_i} - E_{\lambda_f} + \hbar\omega)$$

Простейший пример применения нейтронной спектроскопии – одноузельные (одноионные эффекты)

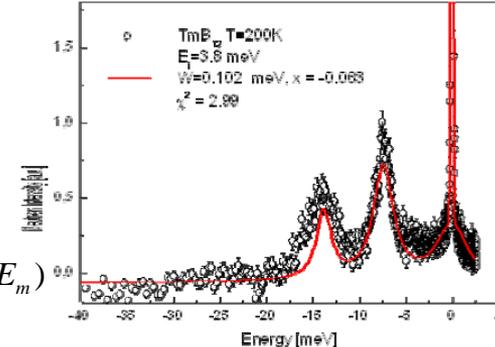
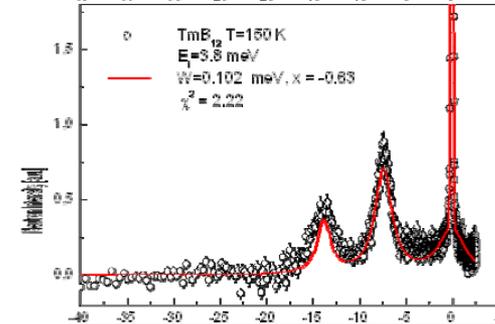
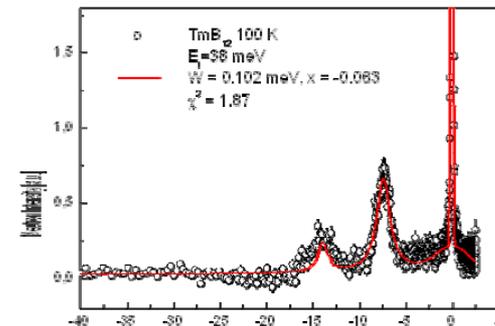


Эффекты КЭП обусловлены снятием вырождения основного $(2J+1)$ -кратно вырожденного f -мультиплета в электр. поле кристалла и переходами между этими уровнями

Er^{3+} в $\text{Ce}_2\text{Ni}_3\text{Si}_5$

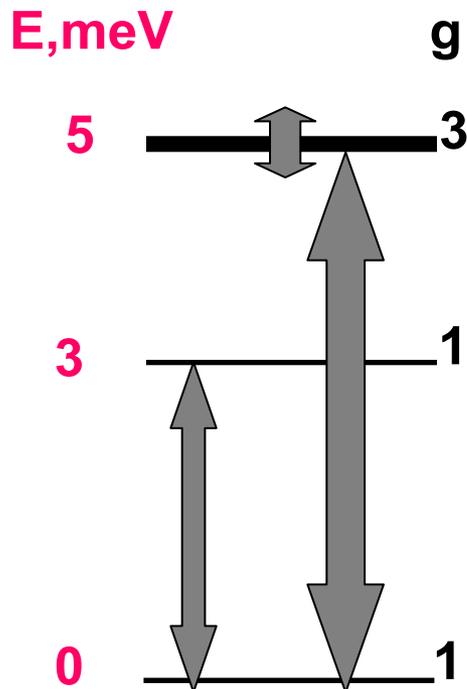


$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \left(\frac{\gamma e^2}{2m_e c^2} \right)^2 [F(\vec{Q})]^2 \frac{k_f}{k_0} \sum_{\alpha\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \epsilon_{\alpha\beta}) \sum_n \frac{g_n e^{-E_n/kT}}{\sum_i g_i e^{-E_i/kT}} \langle \Gamma_n^v | J_\alpha | \Gamma_m^v \rangle \langle \Gamma_m^v | J_\beta | \Gamma_n^v \rangle \delta(\hbar\omega + E_n - E_m)$$



Переходы между дискретными состояниями

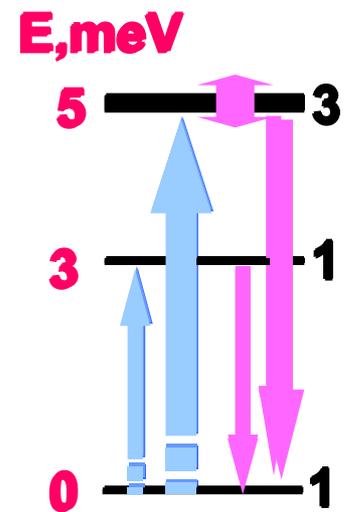
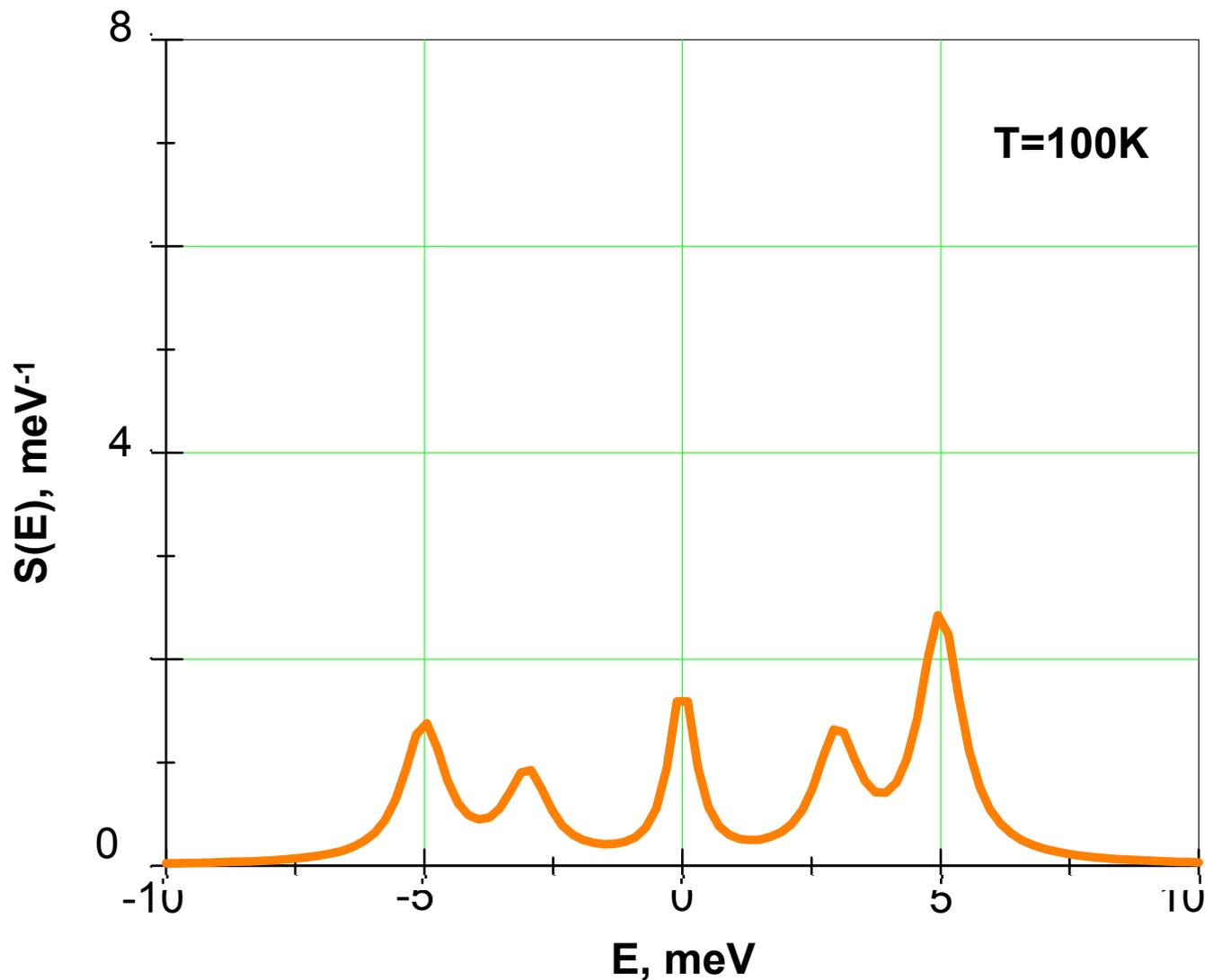
$$S(E, Q, T) \longrightarrow F^2(Q) \cdot \sum_{n,m} \rho_n |\langle m | J_{\perp} | n \rangle|^2 \cdot \delta(E - \Delta_{nm})$$



$$\rho_n = \frac{\exp(-E_n / k_B T)}{\sum_{n=1}^{2J+1} \exp(-E_n / k_B T)}$$

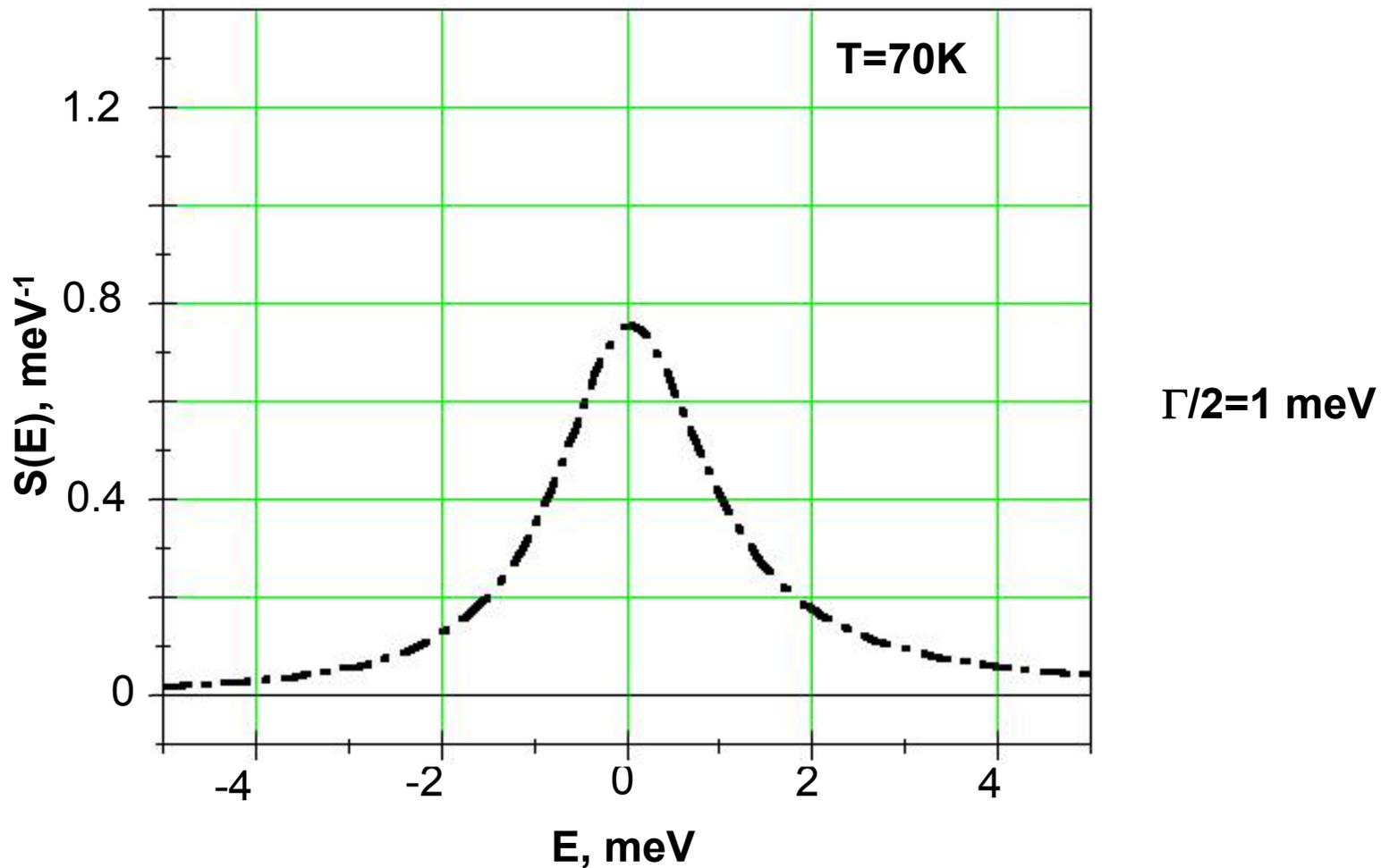
$$|\langle m | J_{\perp} | n \rangle|^2 = \frac{2}{3} \sum_{\alpha=x,y,z} |\langle m | J_{\alpha} | n \rangle|^2$$

Демонстрация принципа детального равновесия



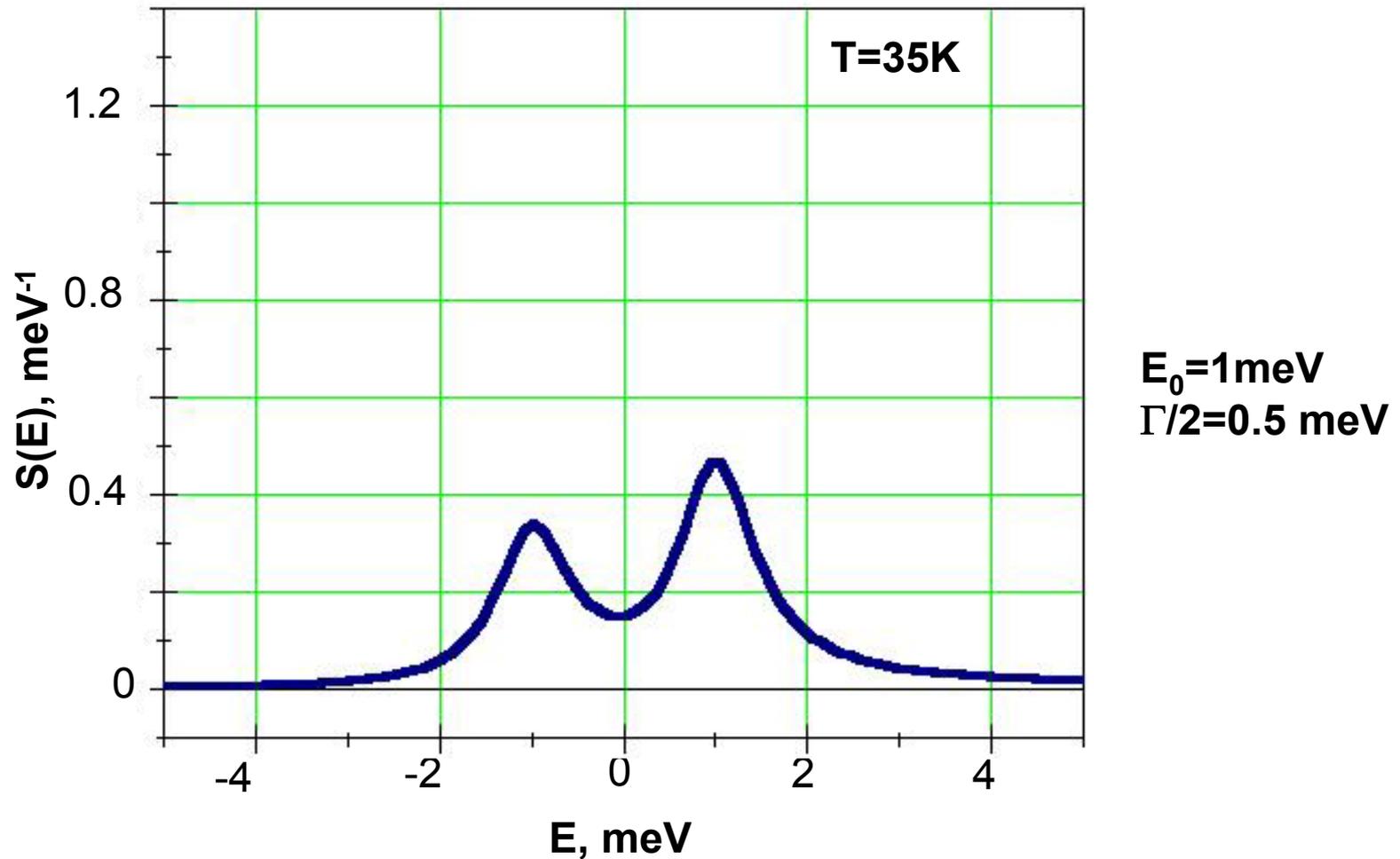
Демонстрация принципа детального равновесия

спектр квазиупругого рассеяния

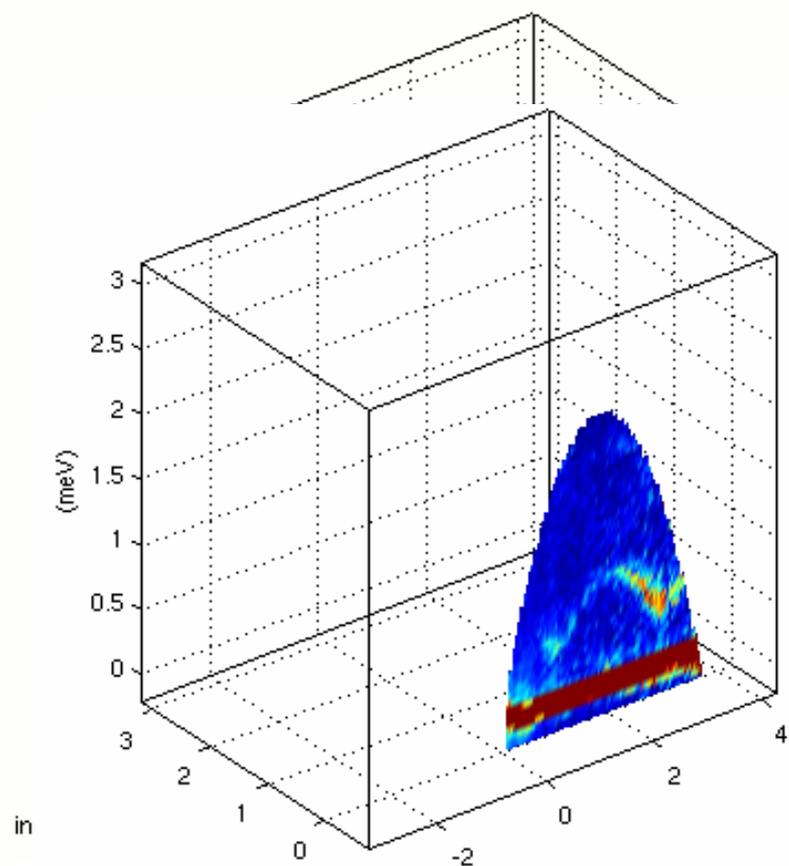
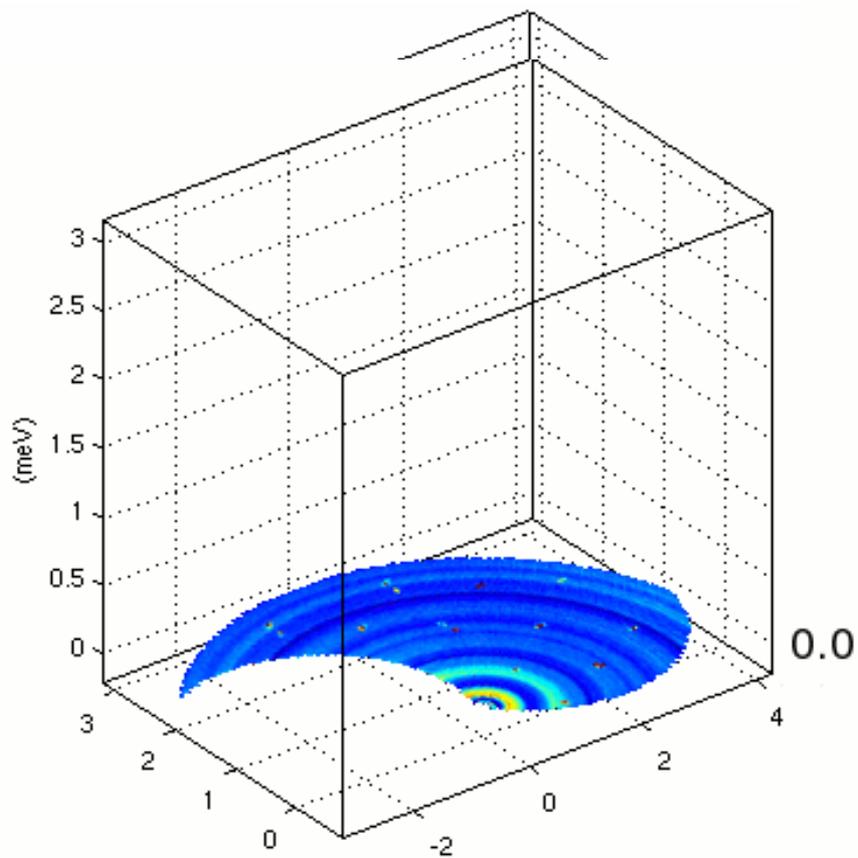


Демонстрация принципа детального равновесия

Неупругое рассеяние



$\text{Ni}_3\text{V}_2\text{O}_8$ $E_i=3.07$ meV; $T=1.4\text{K}$, $(0kl)$ scattering plane



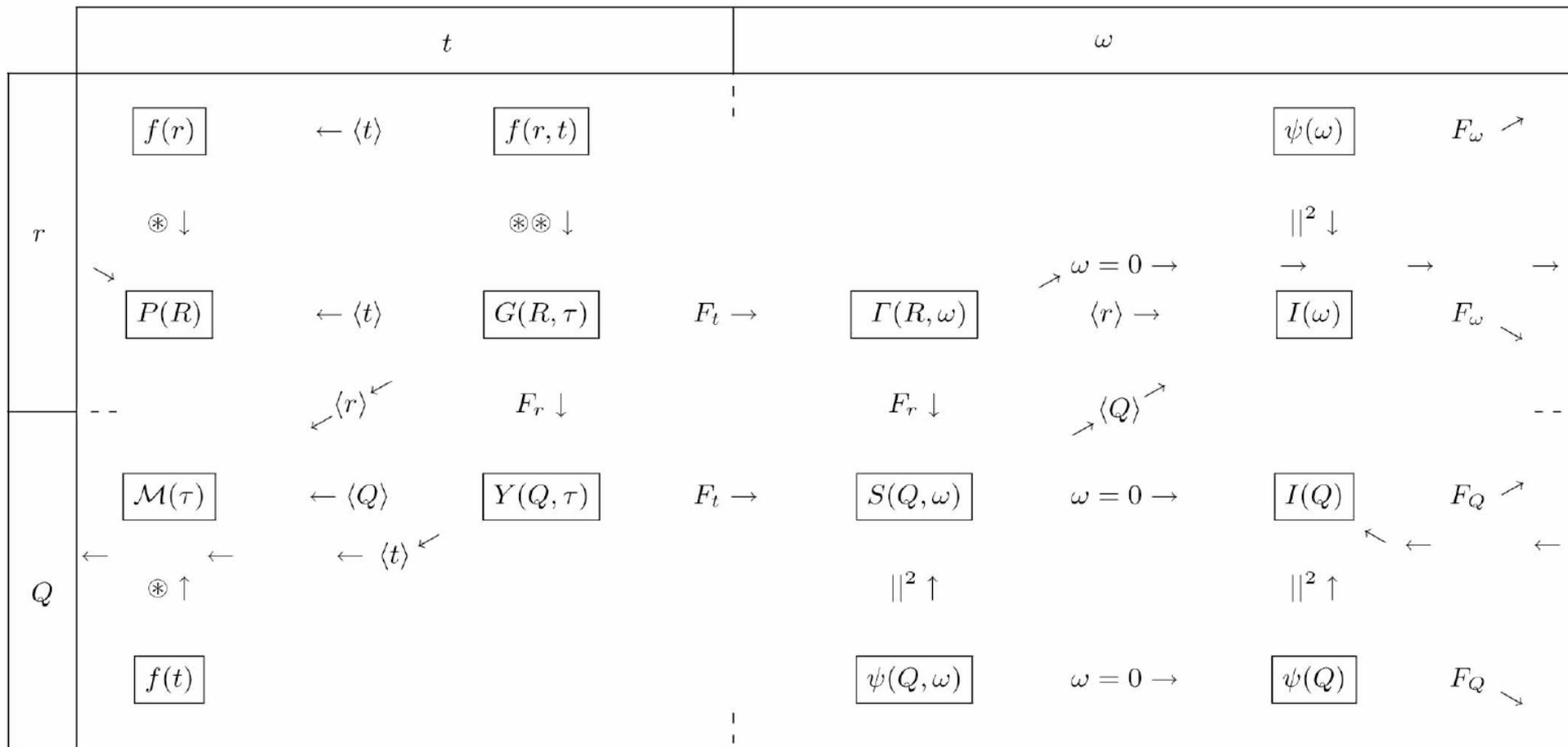
эксперимент проведен на спектрометре CNCS (SNS) "time-event" методом
данные предоставлены А. Подлесняком (ORNL)

Все небесмысленные функции для рассеяния

- $S(Q, \omega)$ is the “scattering law.”
- $Y(Q, \tau)$ is the (unnamed) momentum-time correlation function.
- $\Gamma(R, \omega)$ is the (unnamed) space-energy correlation function.
- $G(R, \tau)$ is the Van Hove space-time correlation function.
- $P(R)$ is the Patterson function.
- $\mathcal{M}(\tau)$ is the “memory function,” a time correlation function for dynamics at a site (sometimes called $G_s(\tau)$, a self-correlation function).
- $I(Q)$ is a diffraction pattern.
- $I(\omega)$ is an inelastic spectrum.
- $f(r, t)$ is a scattering length density.
- $\psi(Q, \omega)$ is a neutron wavefunction.

http://neutrons.ornl.gov/media/pubs/pdf/inelastic_book.pdf

Взаимосвязь основных функций для рассеяния



http://neutrons.ornl.gov/media/pubs/pdf/inelastic_book.pdf

Функция (закон) рассеяния нейтронов. Магнитное рассеяние

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_f}\right)_{\text{mag}} = \frac{k_f}{k_i} (\gamma r_0 \frac{g}{2} F(\mathbf{Q}))^2 \sum_{\alpha\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{Q}_\alpha \hat{Q}_\beta) S^{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega)$$

Функция рассеяния

$$S^{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int \sum_{jj'} \langle S_{j'\alpha}(0) S_{j\beta}(t) \rangle \langle e^{-i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}_{j'}(0)} e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}_j(t)} \rangle e^{-i\omega t} dt$$

Магнитная парная корреляционная функция

$$\chi_q^{\alpha\beta}(\omega) = \frac{(g\mu_B)^2}{N} \int dt e^{-i\omega t} \sum_{ll'} e^{i\vec{k}\cdot(\mathbf{r}_l - \mathbf{r}_{l'})} \langle [S_l^\alpha(t), S_{l'}^\beta(0)] \rangle$$

Следствие флуктуационно-диссипационной теоремы

$$S^{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega) = \frac{\hbar}{\pi} \frac{1}{(1 - \exp(-\hbar\omega/k_B T))} \text{Im} \chi(\vec{Q}, \omega)$$

Концепция квазичастиц. Узнаем мнение гуру

элементарные частицы - элементарные возбуждения квантовых полей, находящихся в низшем (вакуум) энергетическом состоянии

Концепция квазичастиц, возможно, самая плодотворная идея в физике конденсированных сред XX века

- "вакуум" в конденсированной среде = основное состояние системы при $T=0$
- квазичастицы - элементарные возбуждения, переносящие энергию и квазиимпульс
- любой уровень энергии системы получается как сумма энергий квазичастиц
- элементарные возбуждения охватывают многие структурные единицы (кооперативные движения)
- квазичастицы слабо взаимодействуют друг с другом, являются квазистационарными (слабо затухают)
- статистика квазичастиц не обязательно совпадает со статистикой структурных элементов

P.W. Anderson, "Concepts in Solids", 1997:

There are two ideas behind the concept of elementary excitations. First is the idea that the total binding energy of the ground state is not a very important physical quantity, and does not have much to do with the behavior of a physical system. What is important physically is the behavior of the lower excited states relative to the ground state: those states, that is, which are likely to be excited at relatively low temperatures or by weak external fields. We think immediately of a metal or a semiconductor, in which all the behavior is determined by the low excited states which we speak of as having a few moving charge carriers, or of the elastic or thermal properties of a solid, determined by the presence of a small number of lattice waves, which we call phonons. Thus our interest is often focused on the set of low-lying excited states of a system as the physically most fundamental property of it.

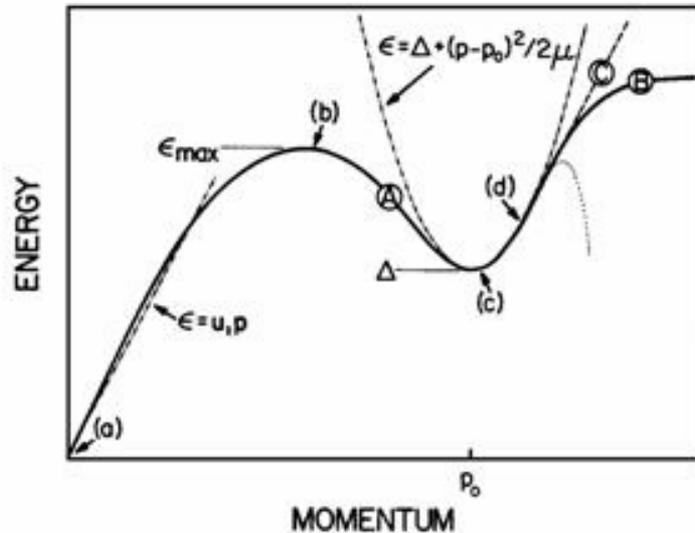
Пример квазичастиц – возбуждения в гелии

Физика продвинулась в понимании сверхтекучести гелия и его макроскопических свойств только после выяснения особенностей спектров его возбуждений:

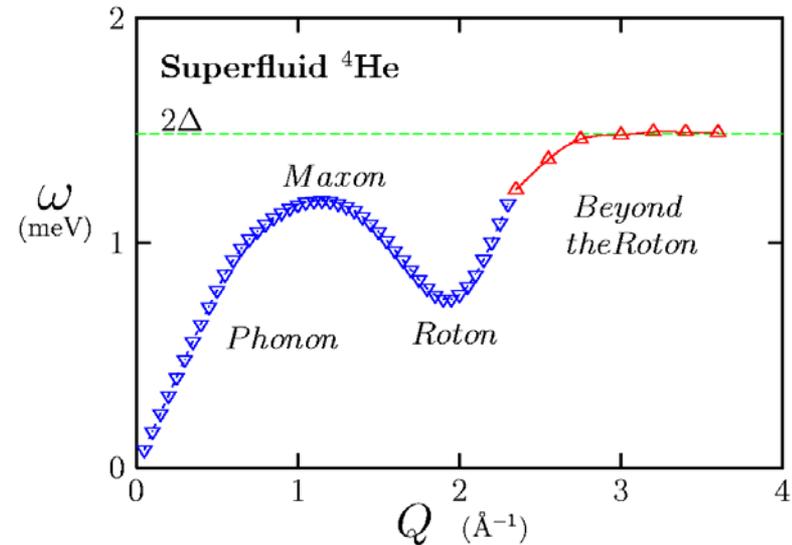
1. участка с линейной дисперсией (в обычных жидкостях такого не бывает)
2. ротонного минимума

Эти особенности были постулированы Ландау в "донецкую" эпоху а затем блестяще подтверждены нейтронной спектроскопией

Дисперсия квазичастиц в жидком гелии-II,
Гипотеза Л.Д. Ландау, 1941

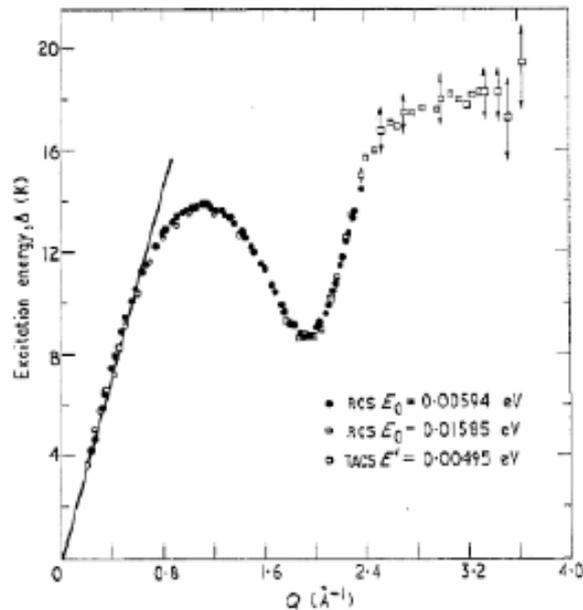


Нейтронный эксперимент (1971)



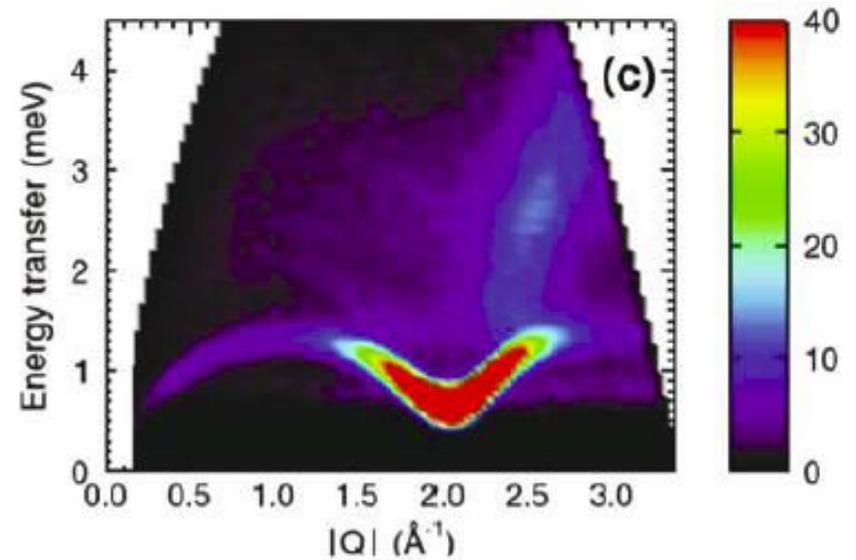
Квазичастицы в жидком гелии - 2008 vs 1971

TAS



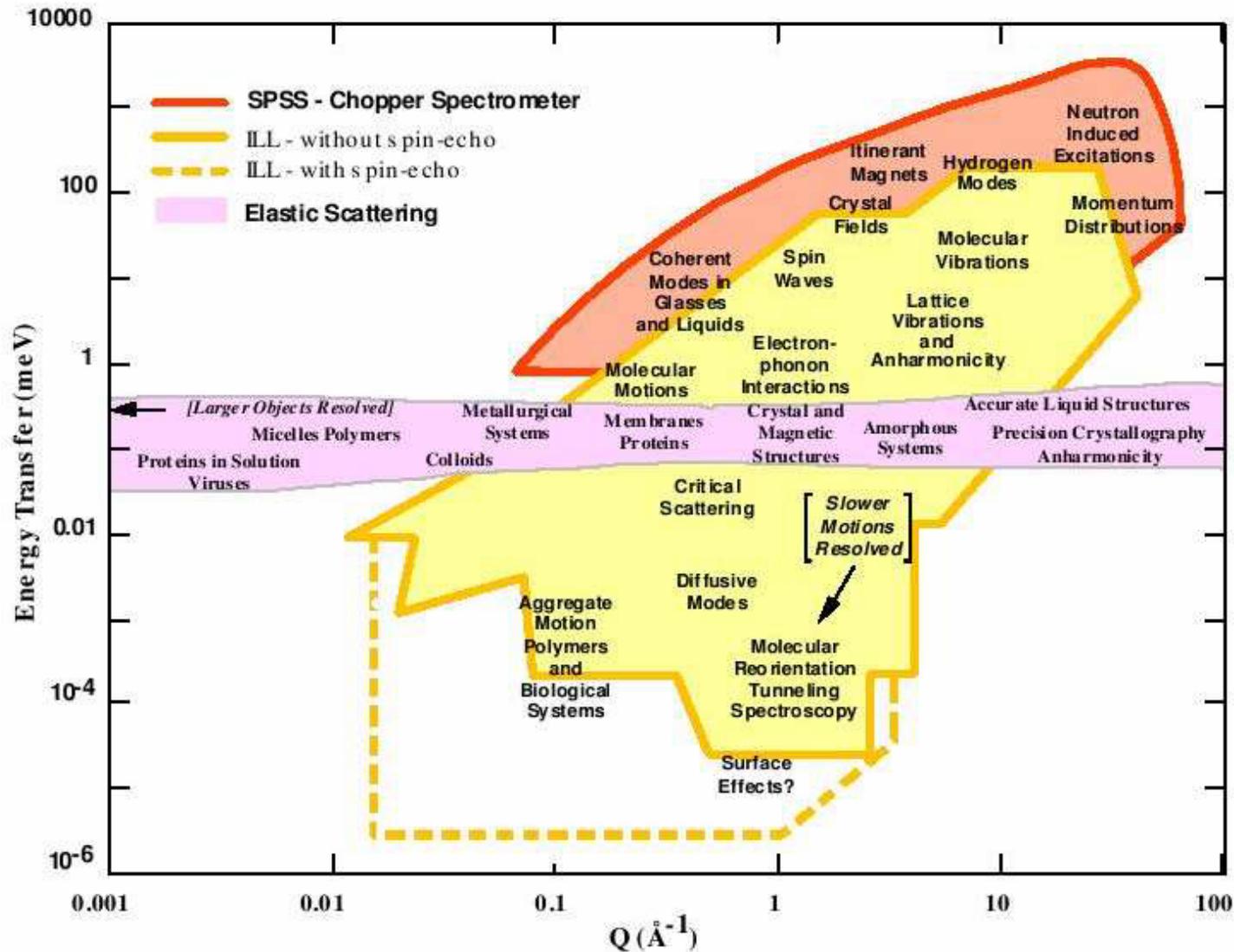
Cowley and Woods., Can. J. Phys. 49, 177 (1971)

TOF



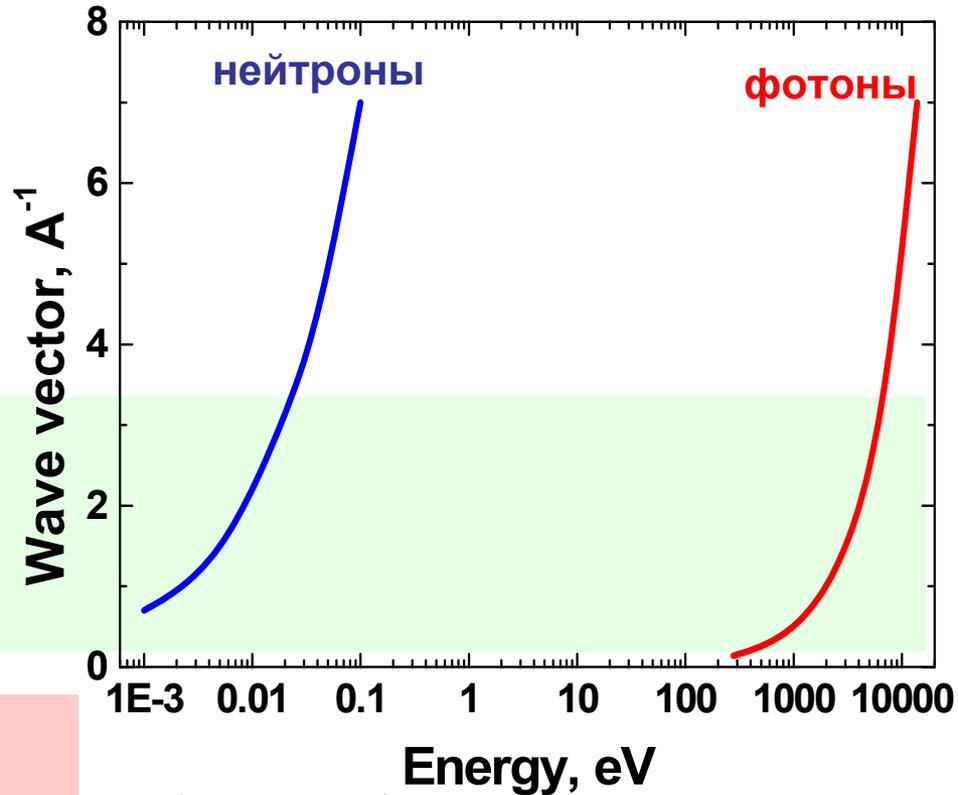
Blackburn *et al.*, Pramana 71, 673 (2008)

Доступная для НРН область в E-Q пространстве



Нейтроны против фотонов

Возможности фотонов и нейтронов



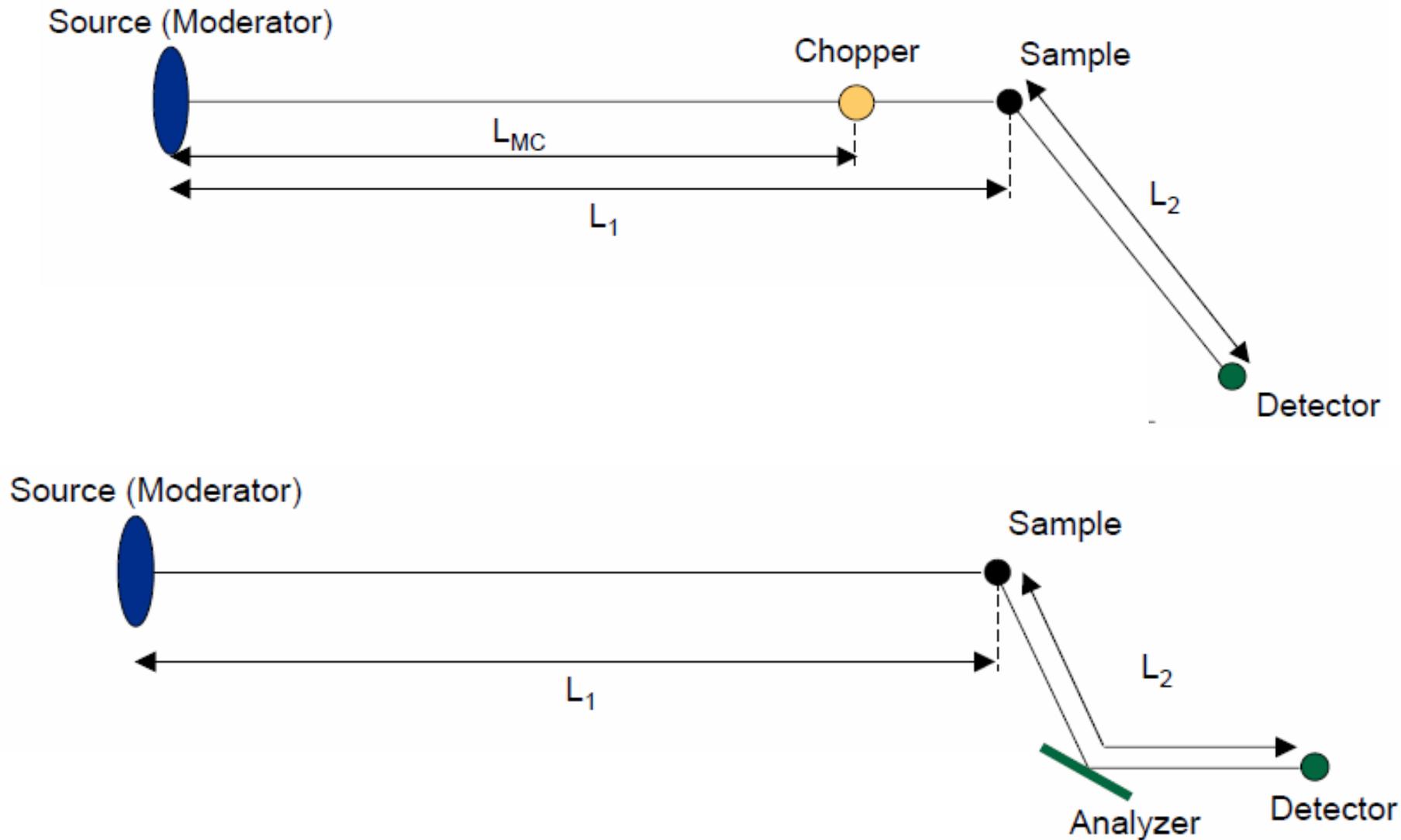
Область волновых векторов возбуждений в конденсир. средах

Область характерных энергий возбуждений в конденсированных средах

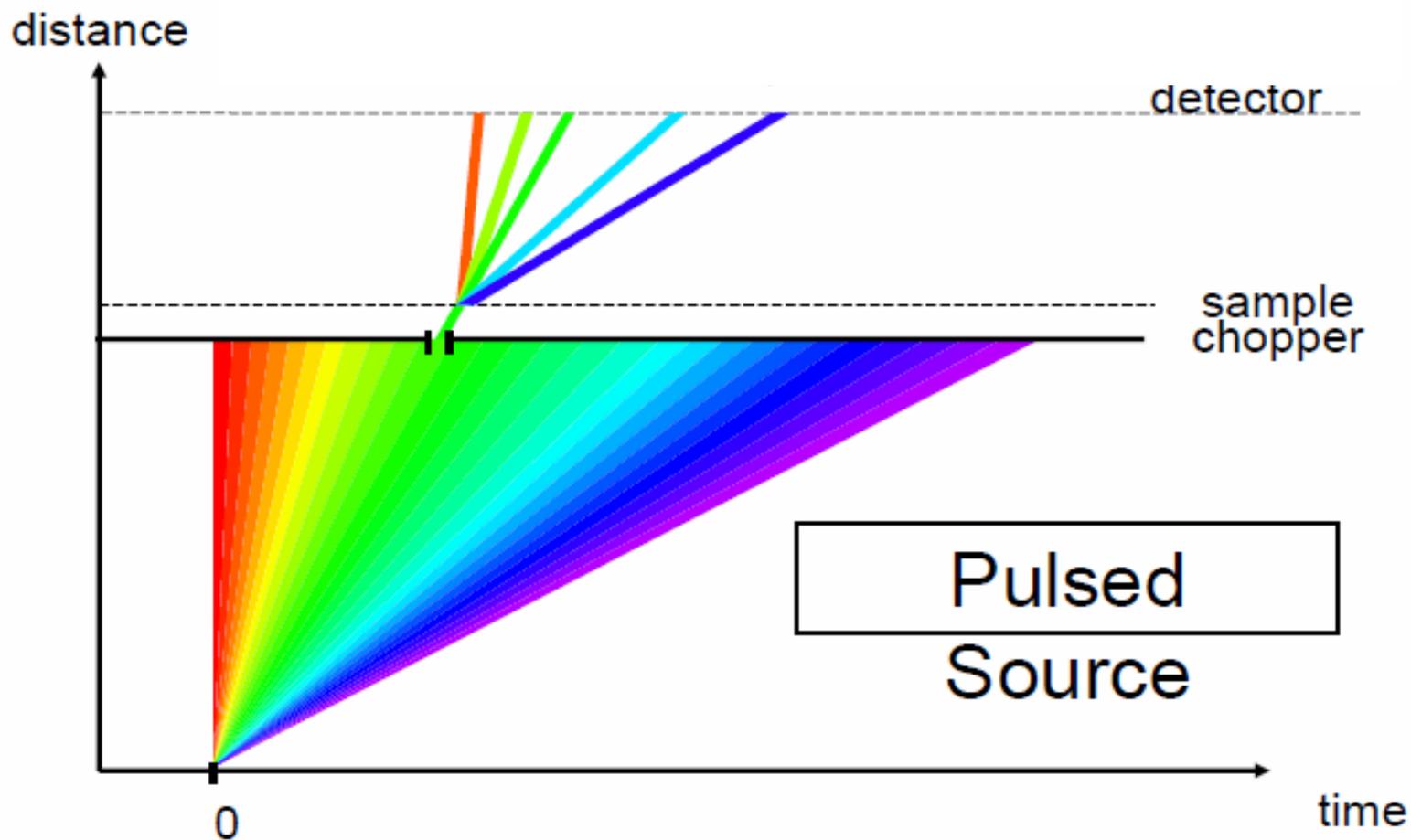
Образцы для нейтронной спектроскопии



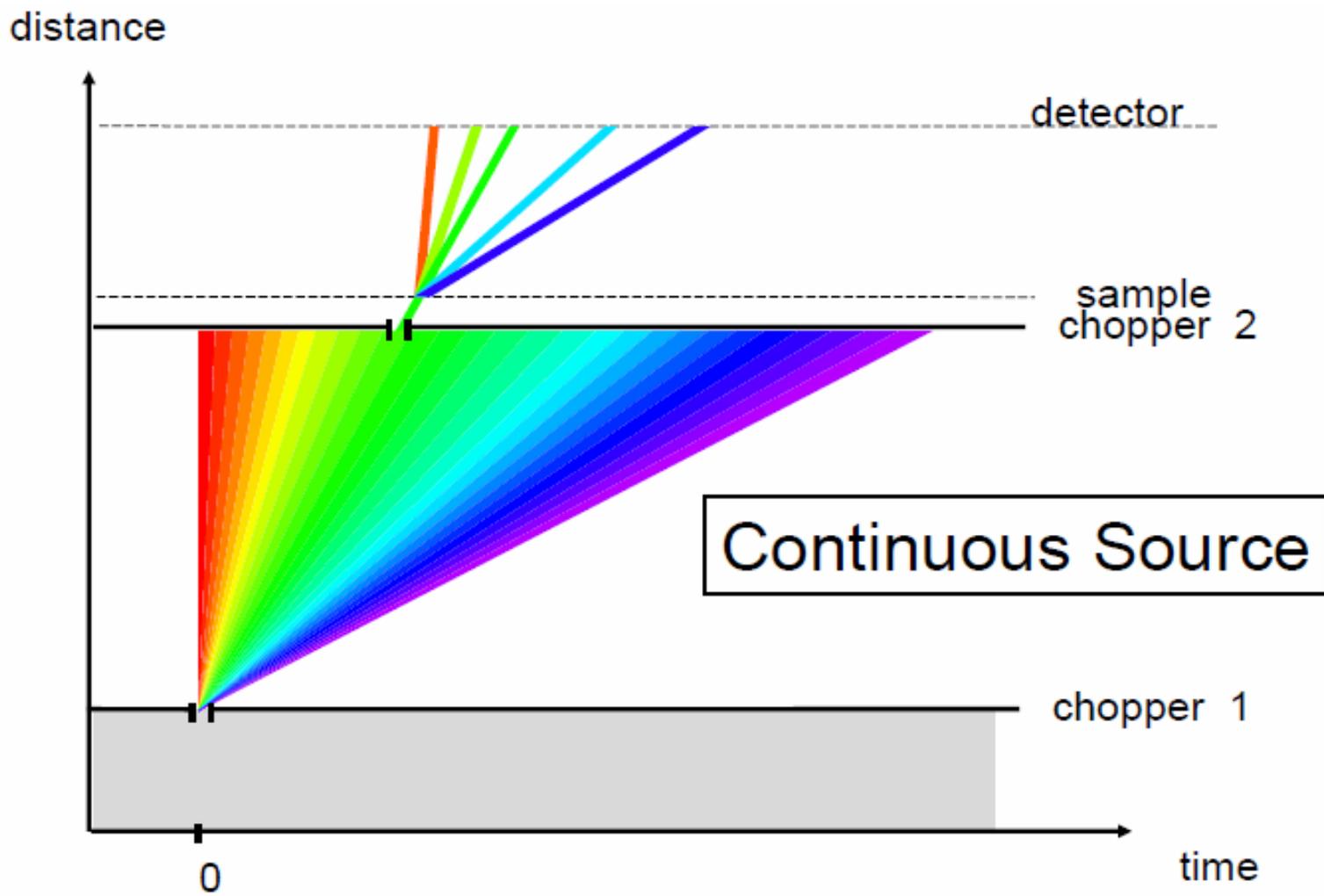
TOF спектрометры прямой и обратной геометрии геометрии



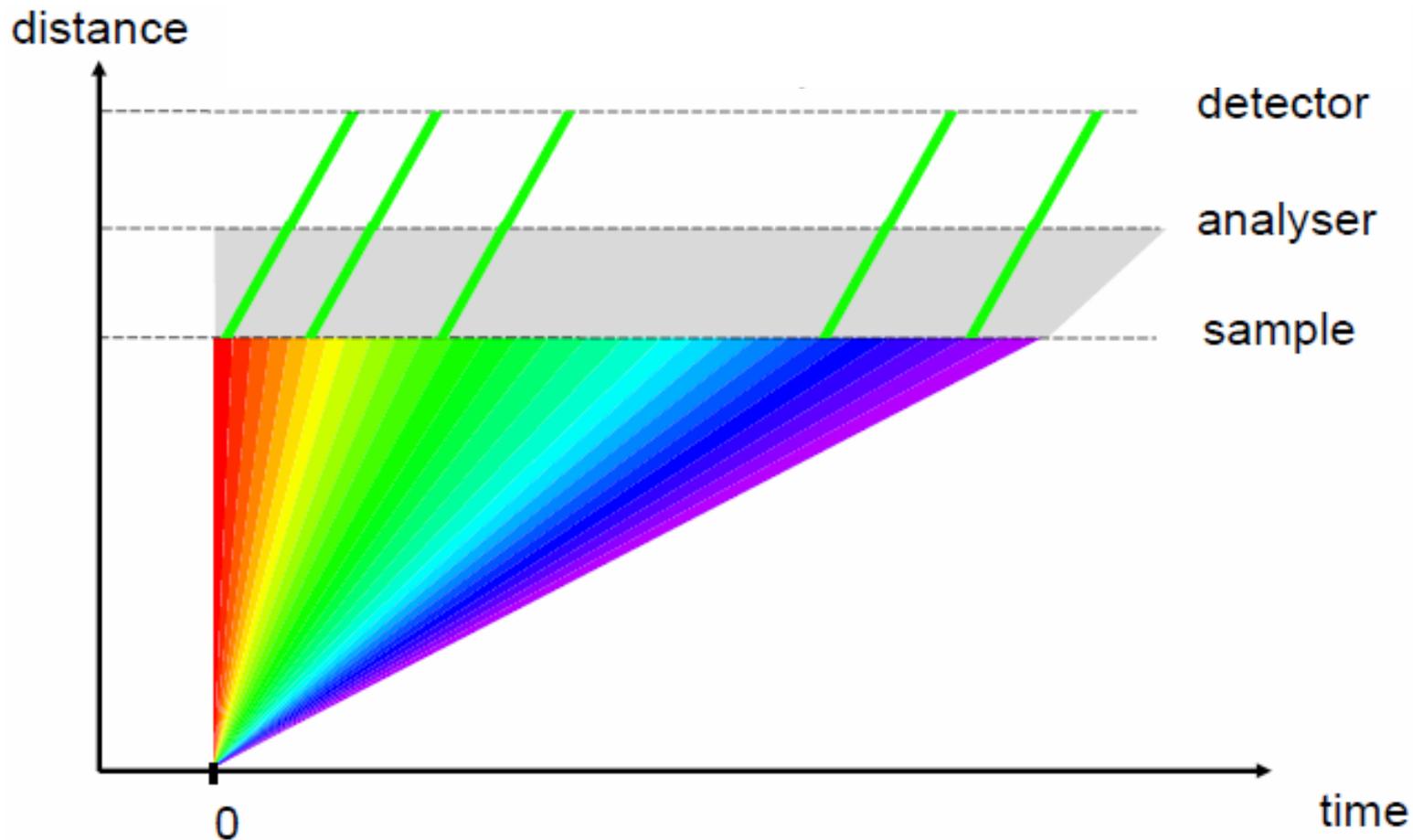
TOF прямой геометрии для импульсного источника



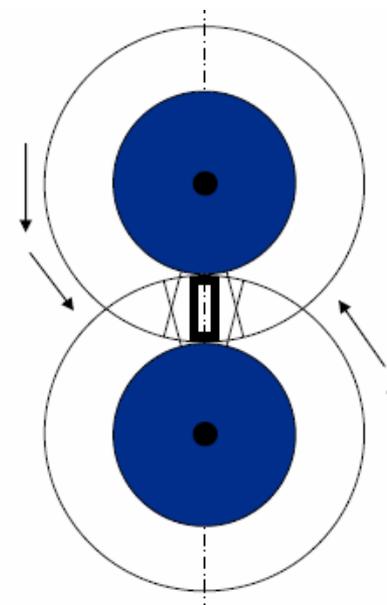
TOF прямой геометрии для стационарного источника



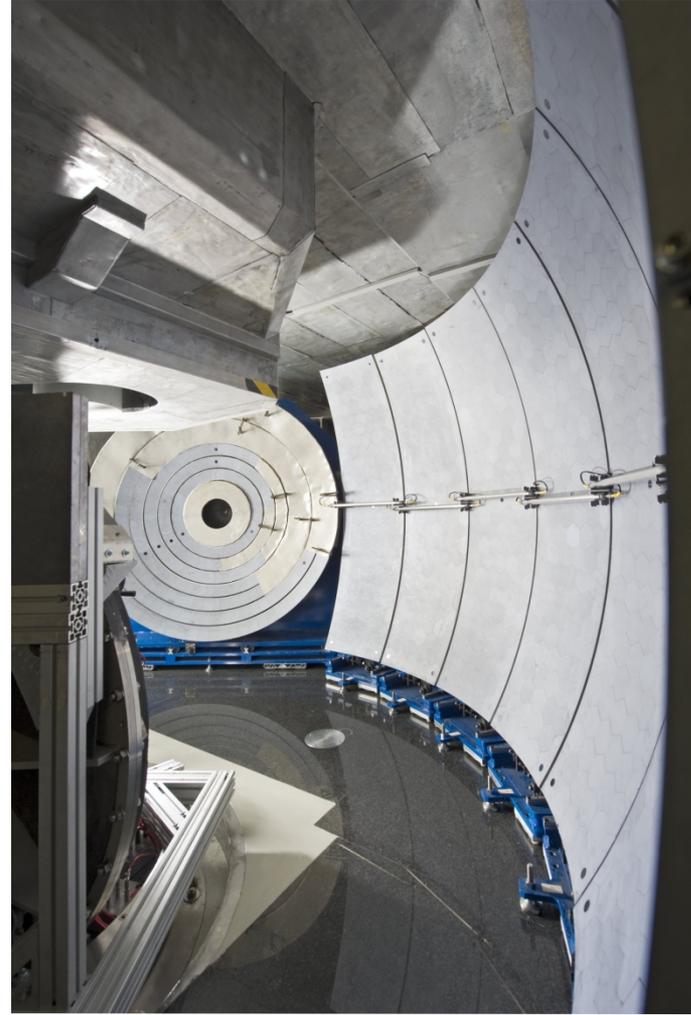
TOF обратной геометрии для импульсного источника



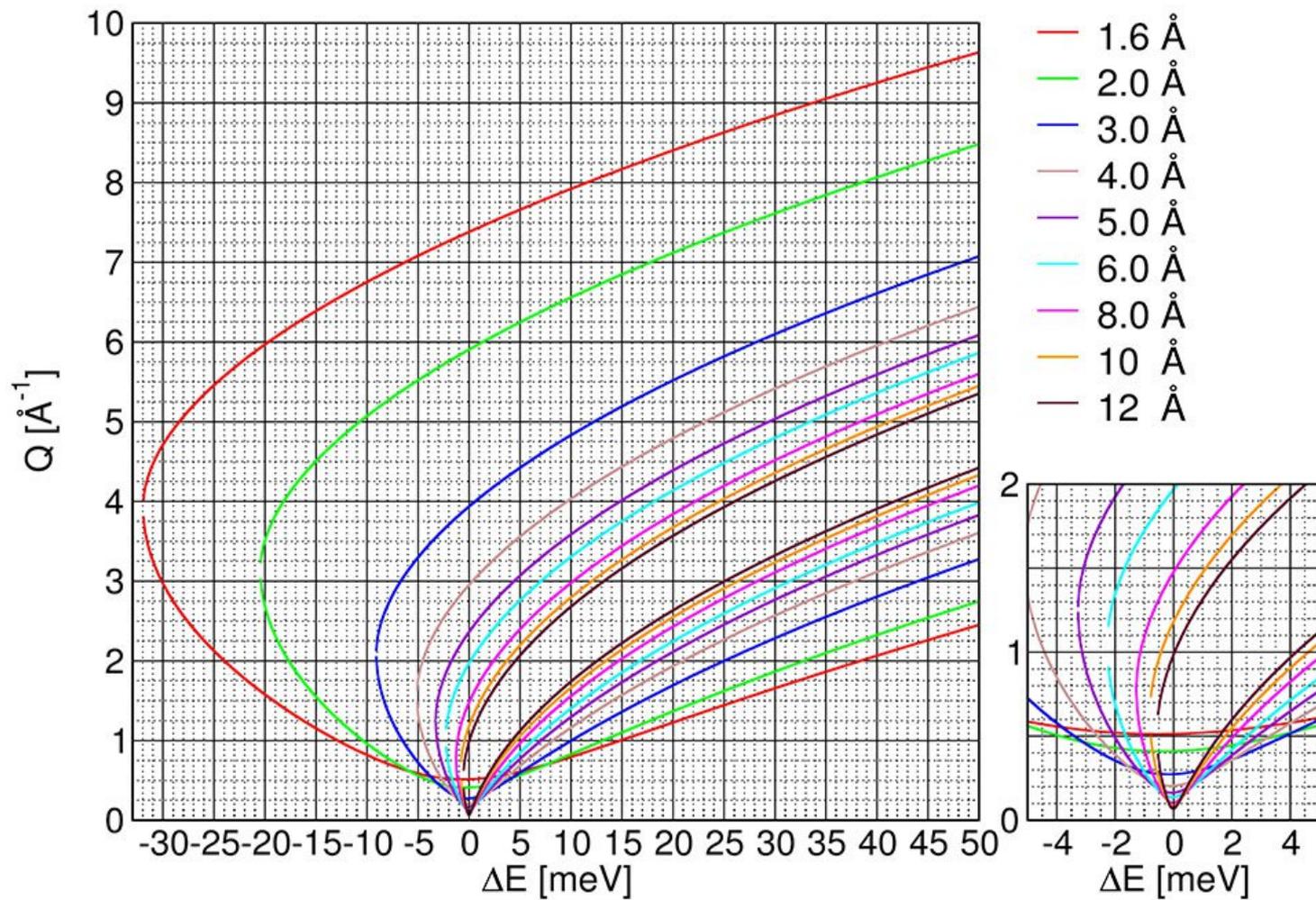
Основа TOF технологий НРН – детекторы и прерыватели



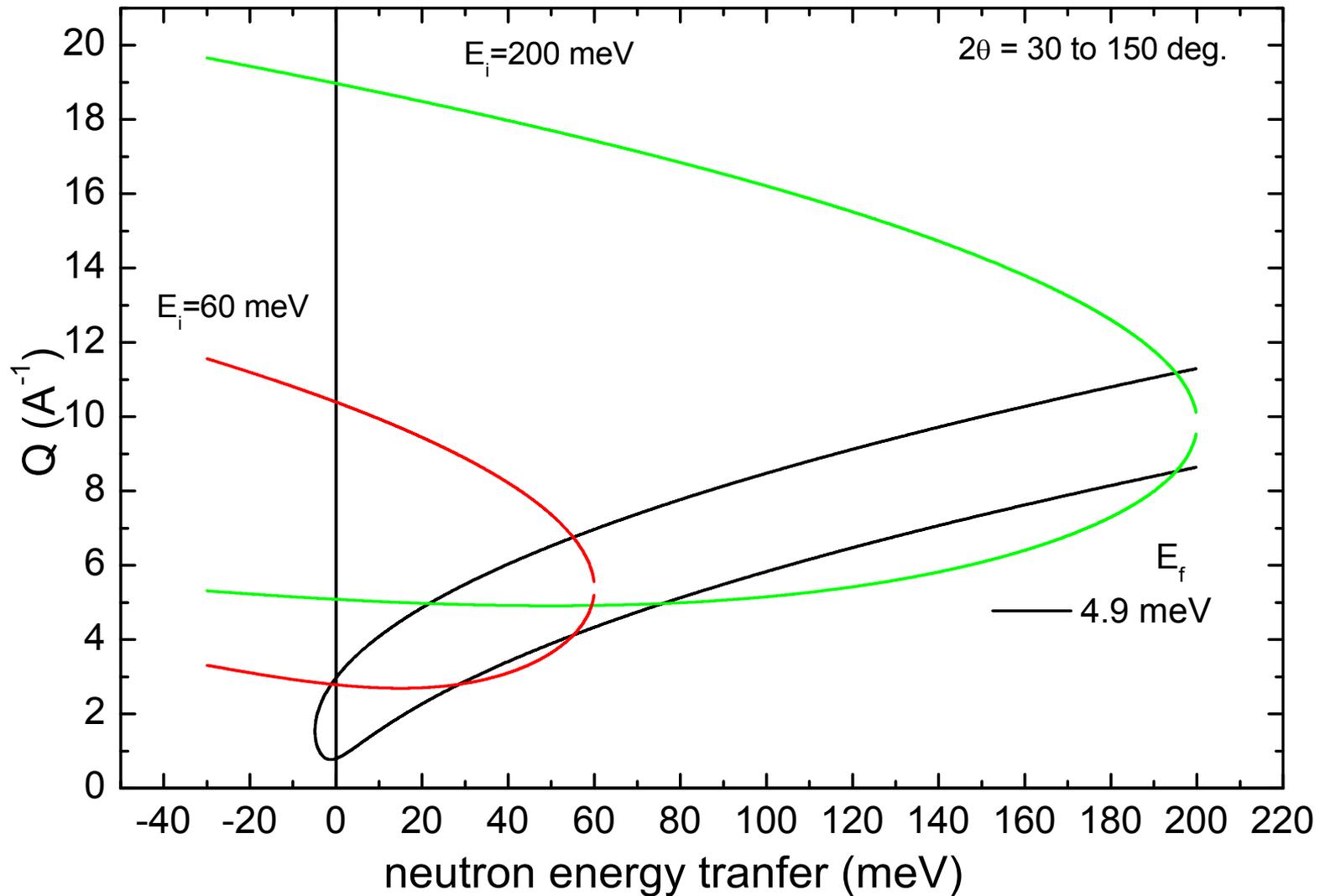
Детекторы TOF спектрометров – похоже на физику высоких энергий?



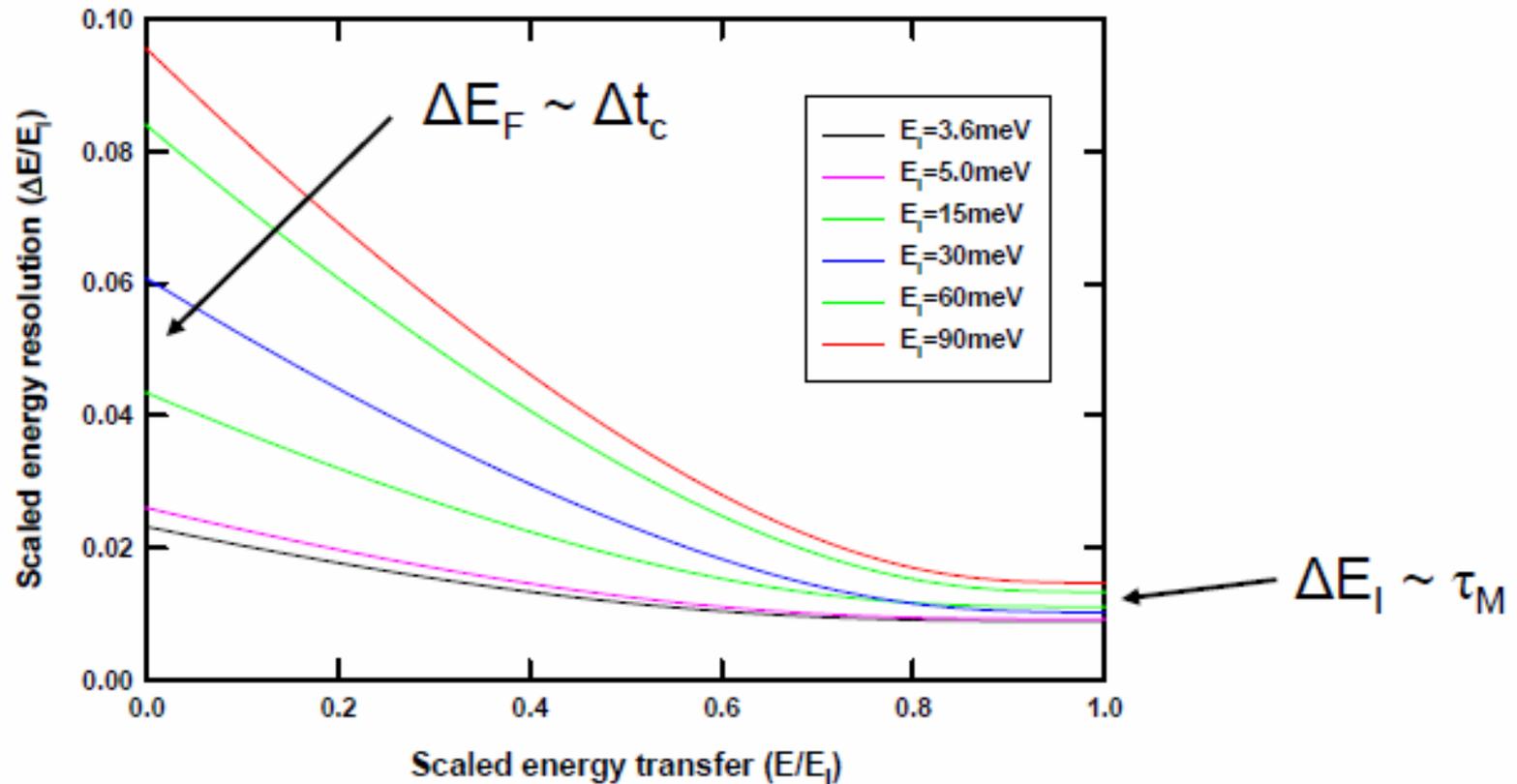
Доступный диапазон в Q-E пространстве



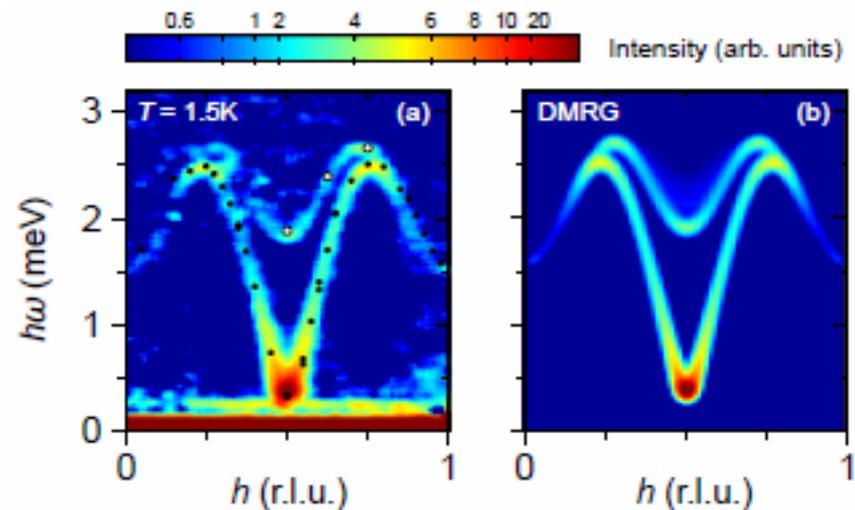
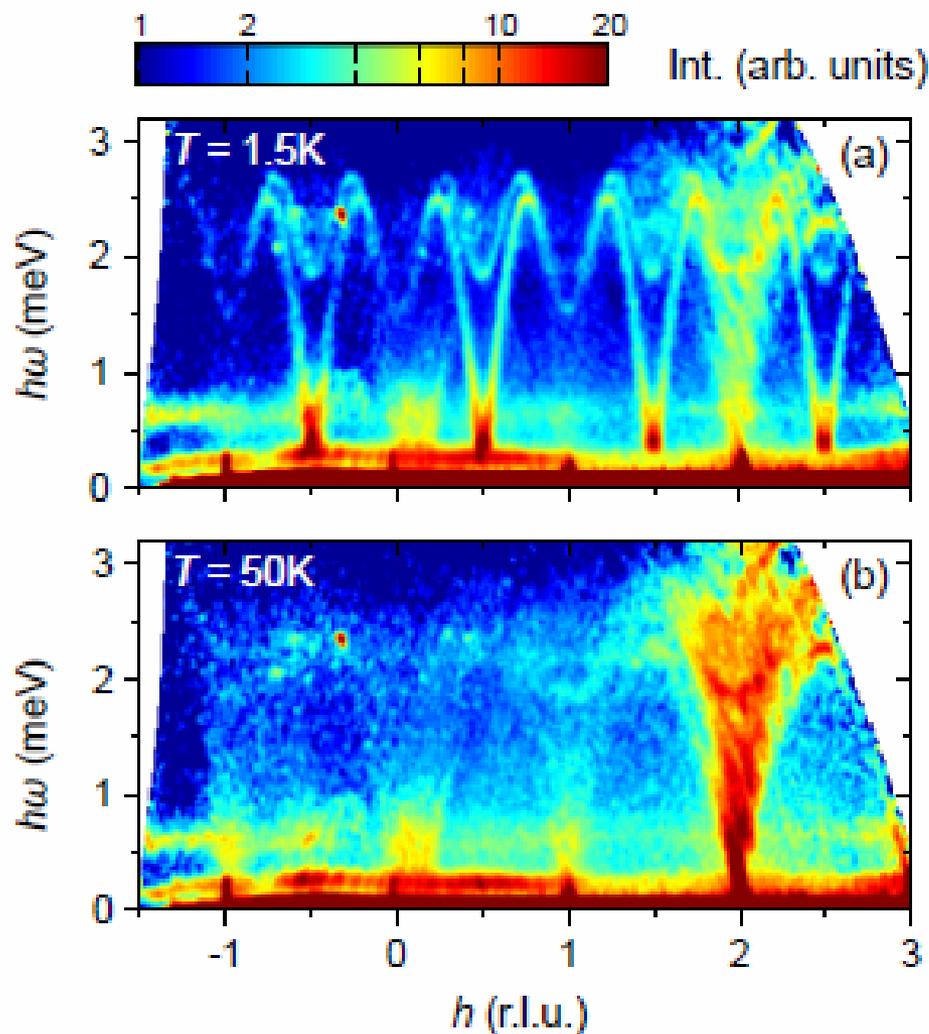
Прямая геометрия против обратной для TOF спектроскопии



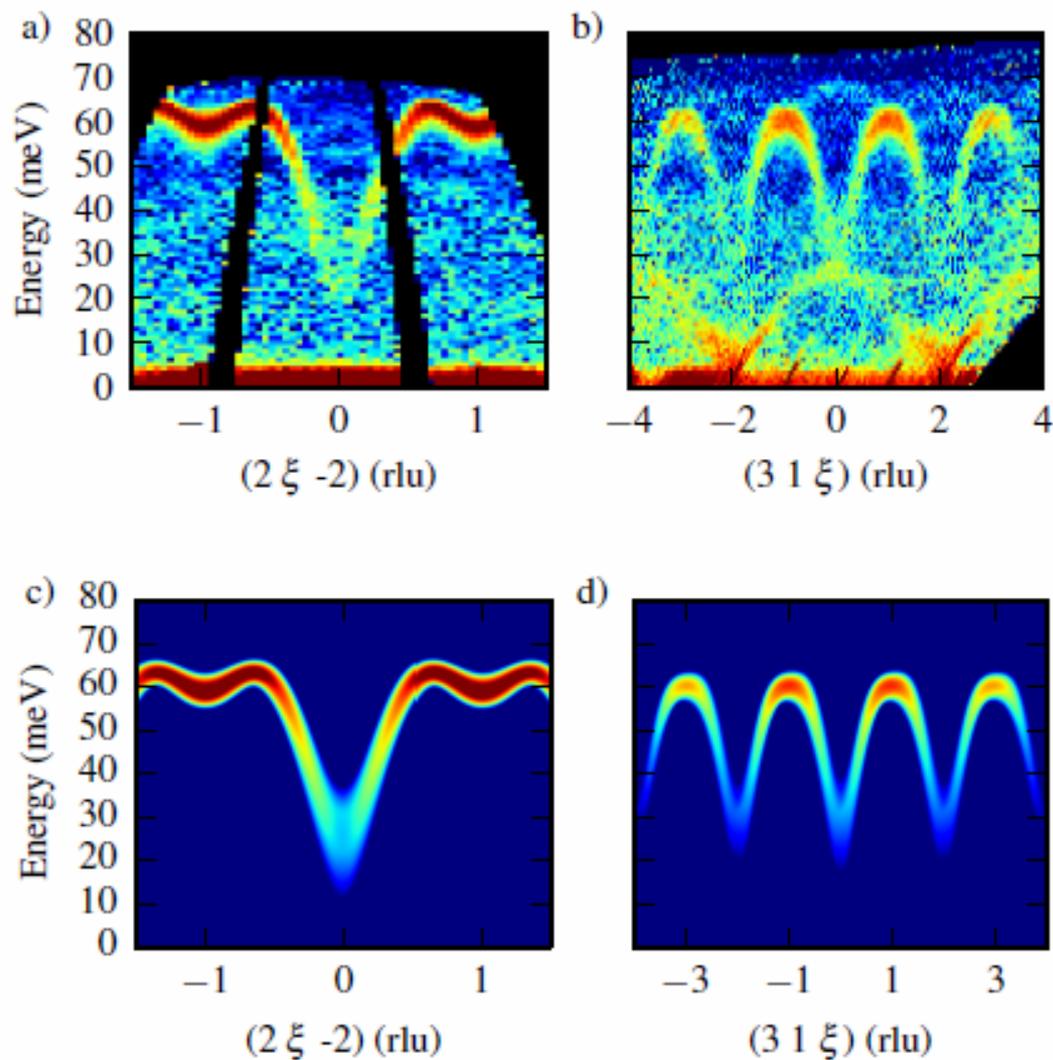
Энергетическое разрешение для TOF прямой геометрии



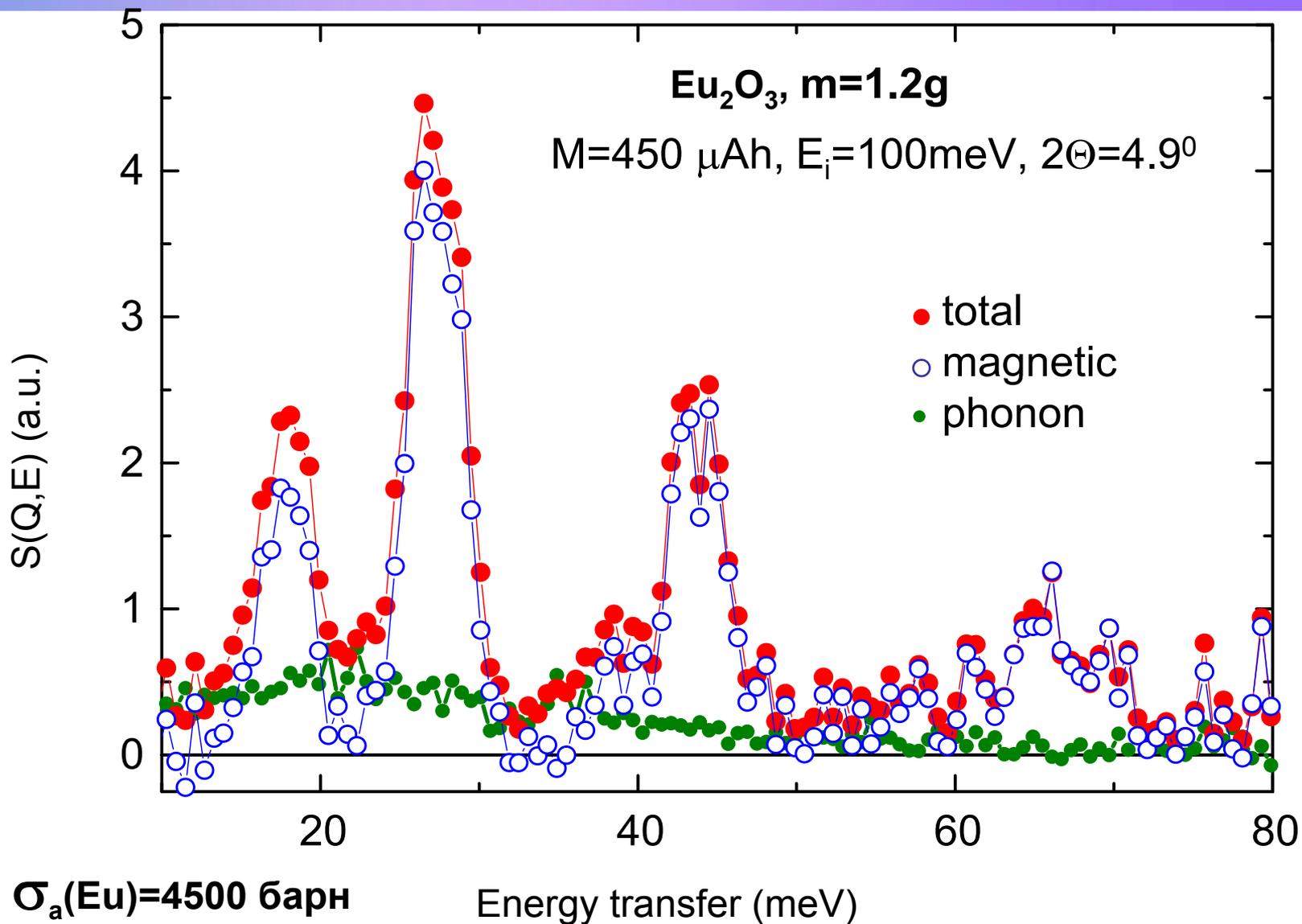
Сканеры возбуждений. Примеры результатов измерений.



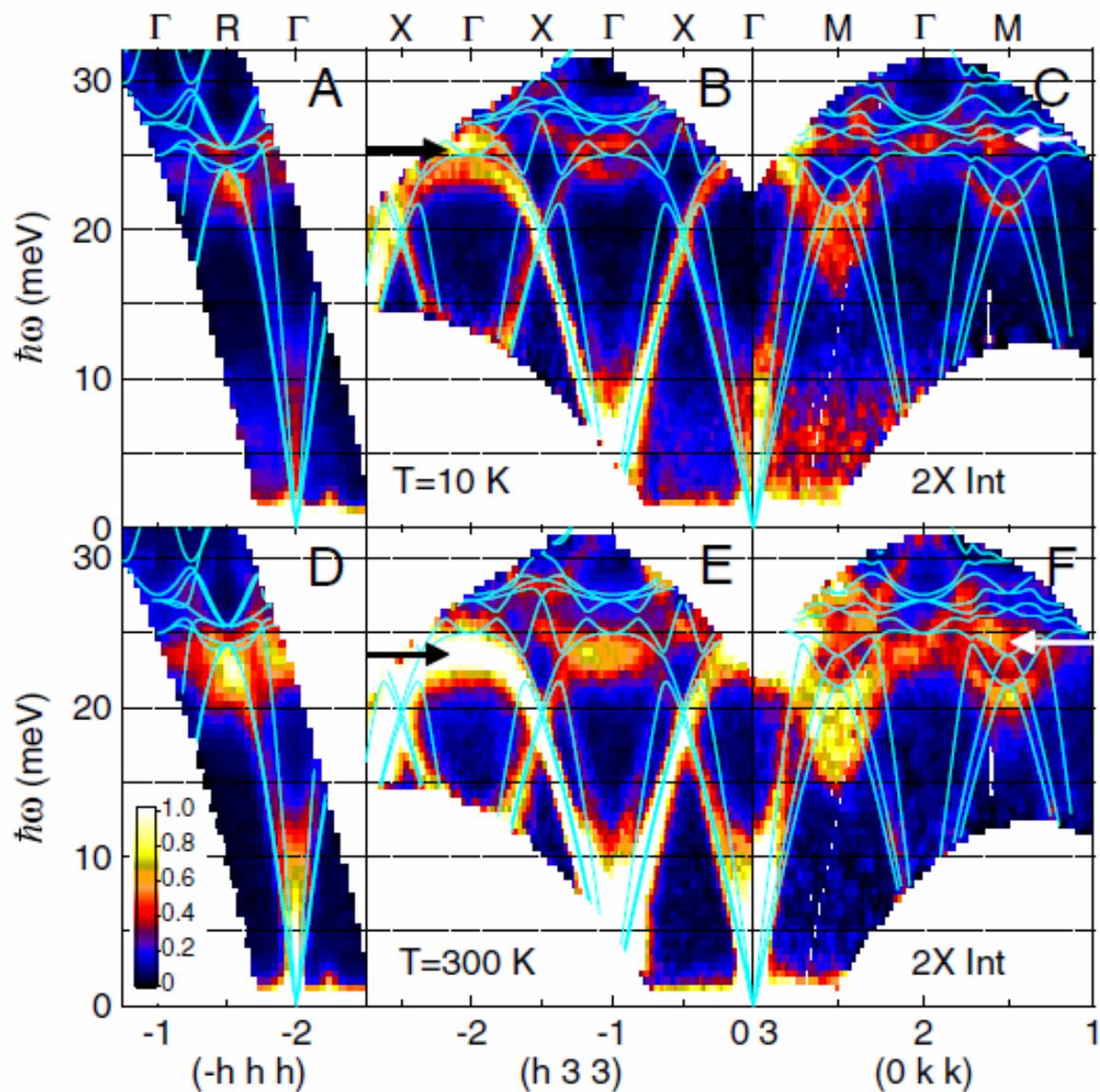
Сканеры возбуждений. Примеры результатов измерений.



Демонстрация возможностей. Образец с сильным поглощением



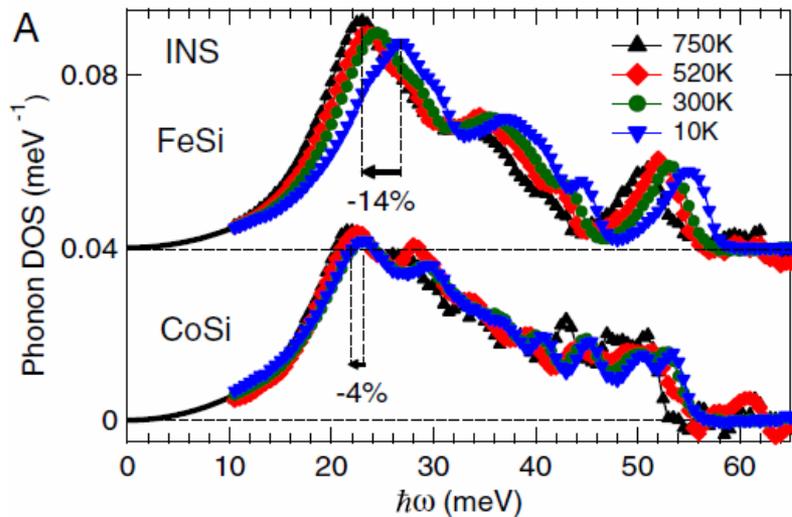
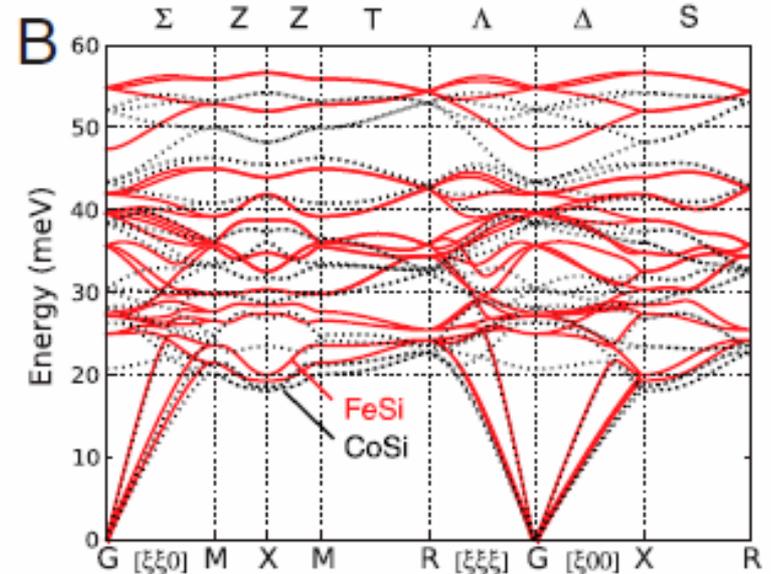
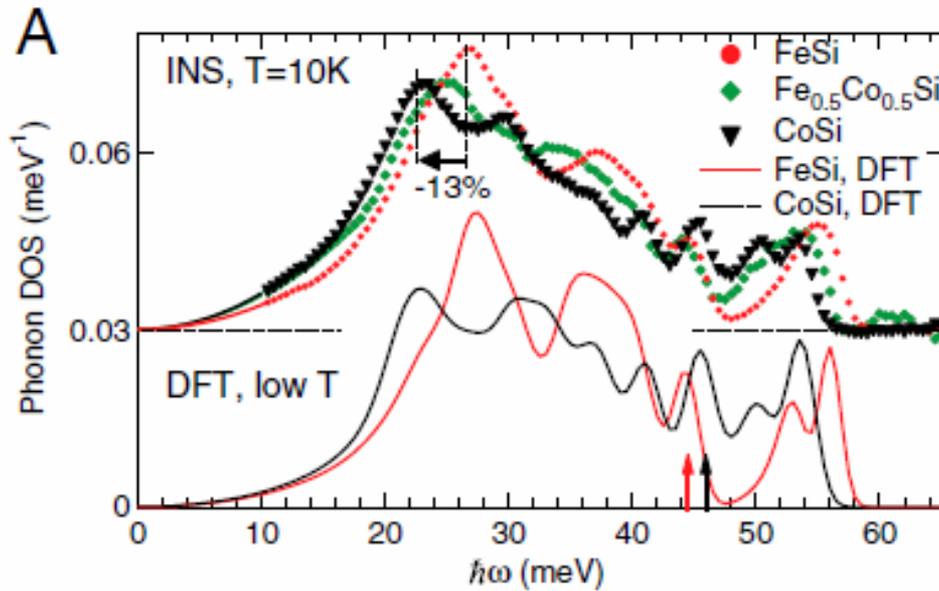
Динамика решетки FeSi и CoSi



O. Delaire et al.,
PNAS **108** 4725 (2011)

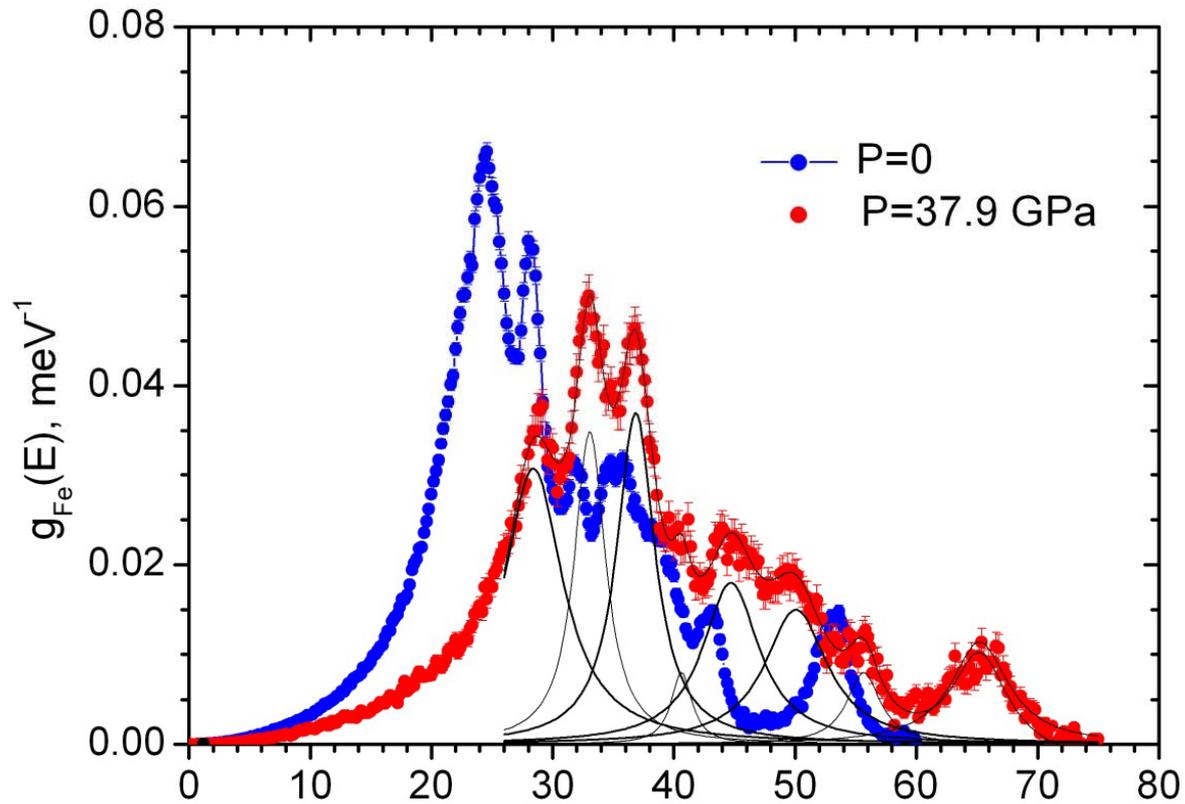
измерения проведены на
TOF спектрометре
ARCS (SNS, ORNL)

Динамика решетки FeSi и CoSi



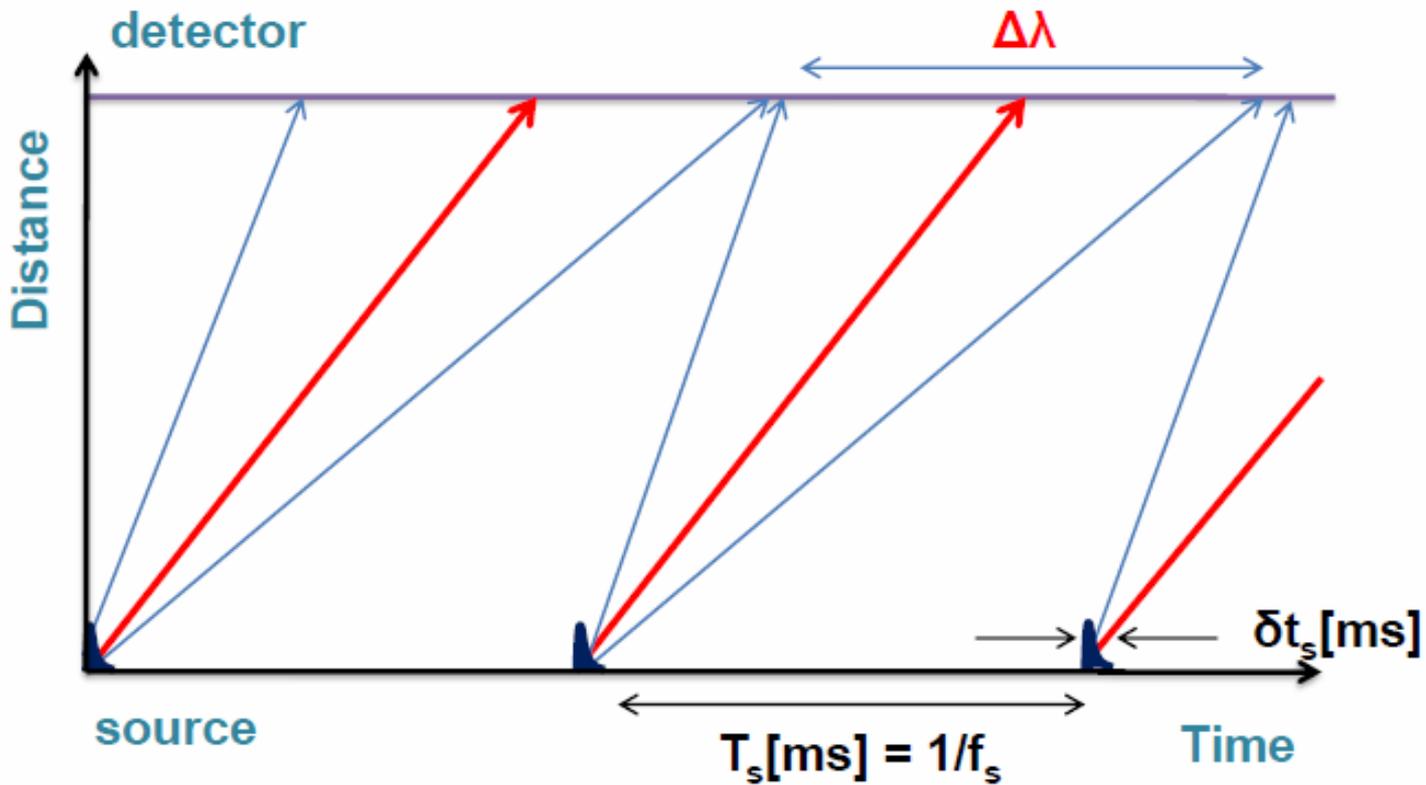
O. Delaire et al.,
PNAS 108 4725 (2011)

FeSi. Синхротронные измерения 2013 г.

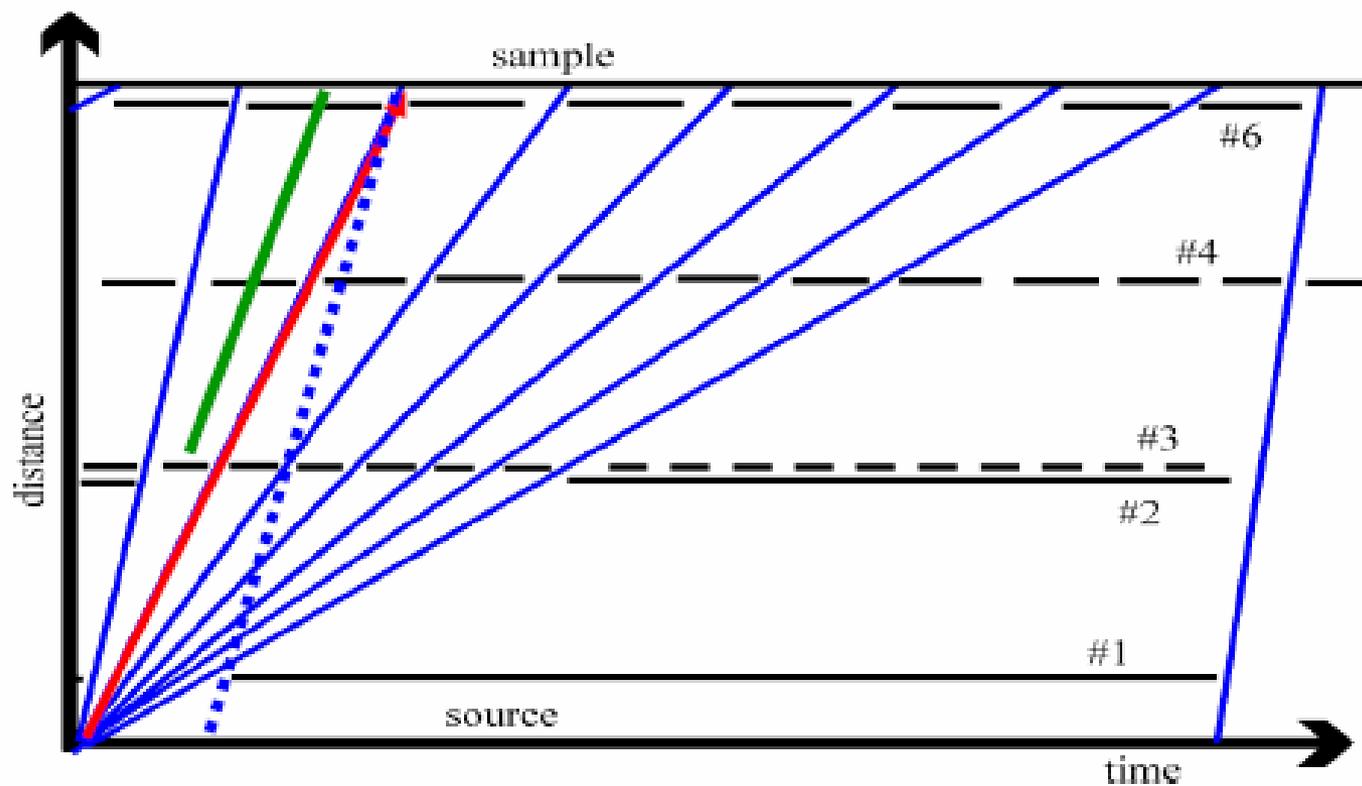


Эксперимент проведен методом ядерного неупругого рассеяния на линии ID28 ESRF

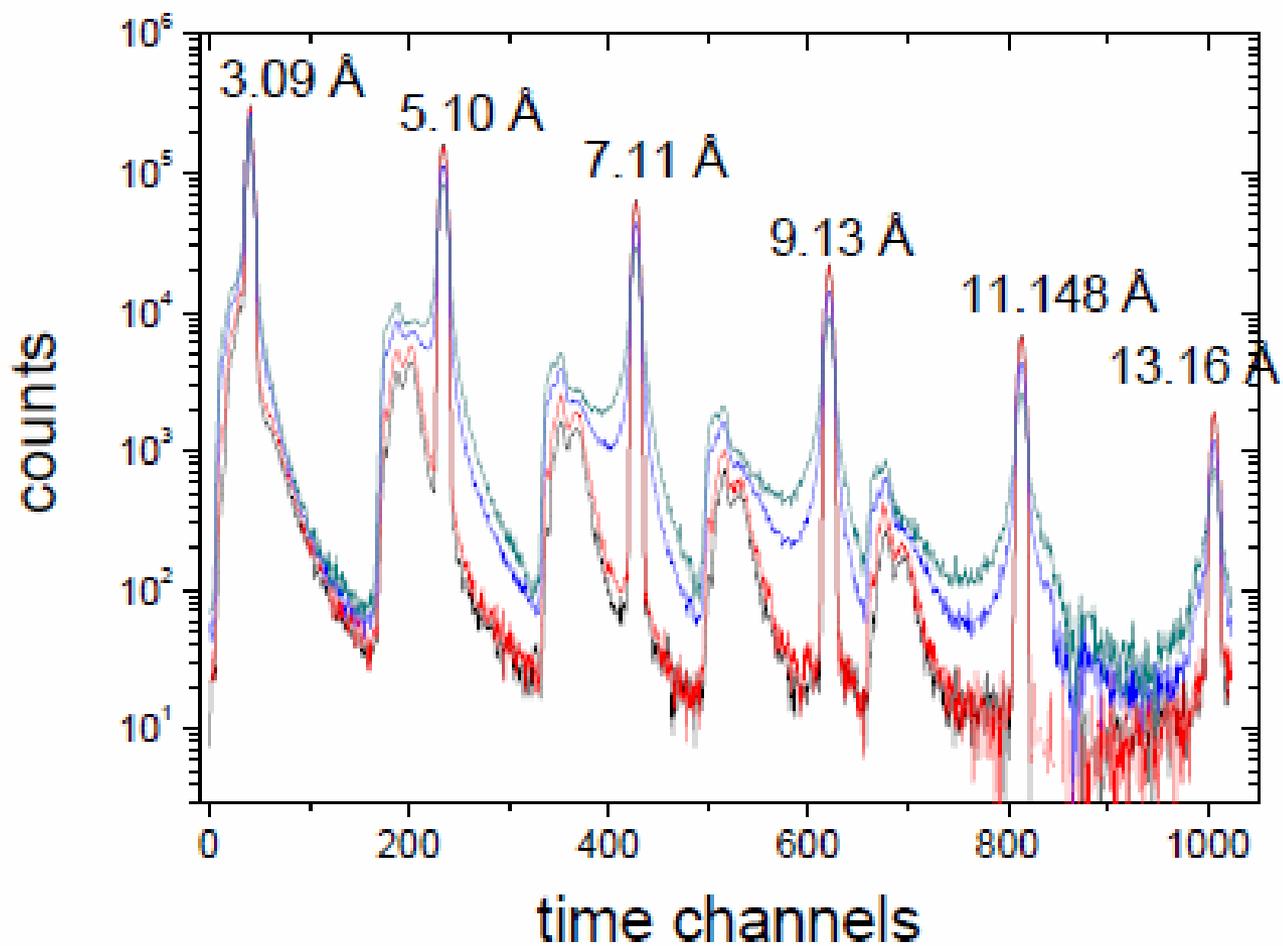
Перспективное направление - TOF мультиплицирование



Перспективное направление - TOF мультиплицирование



Перспективное направление - TOF мультиплицирование

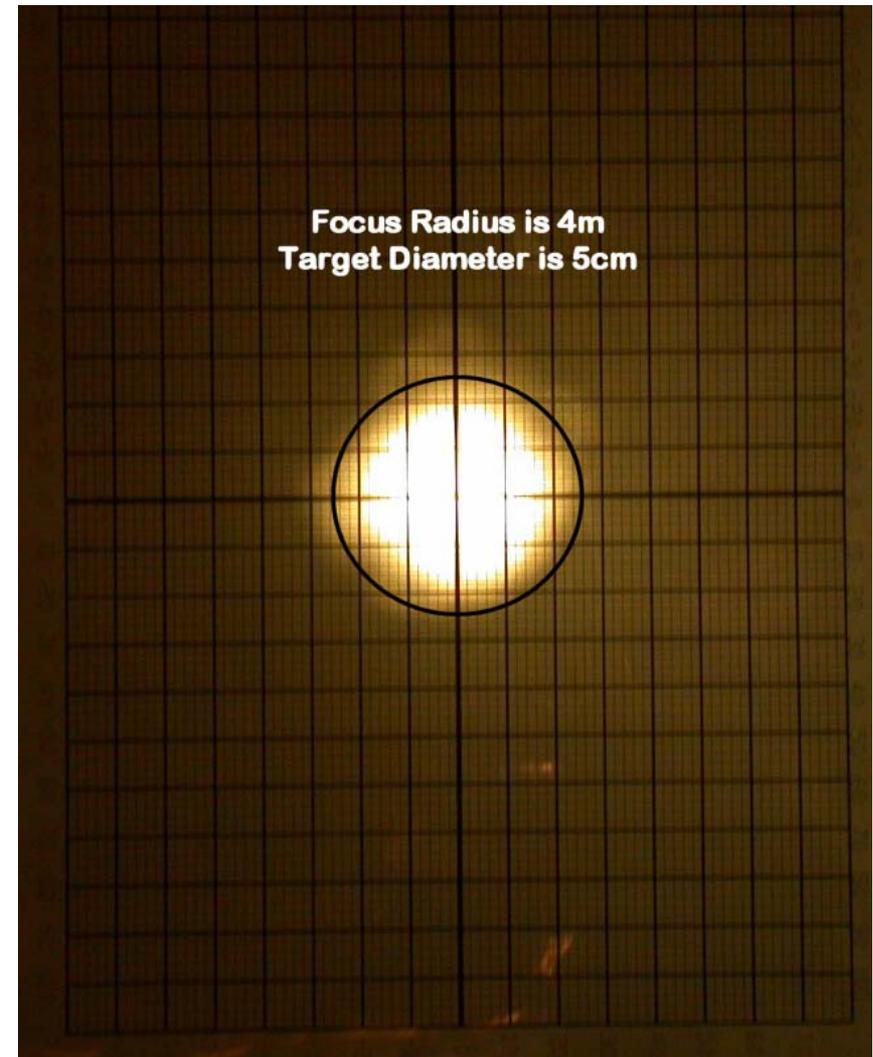
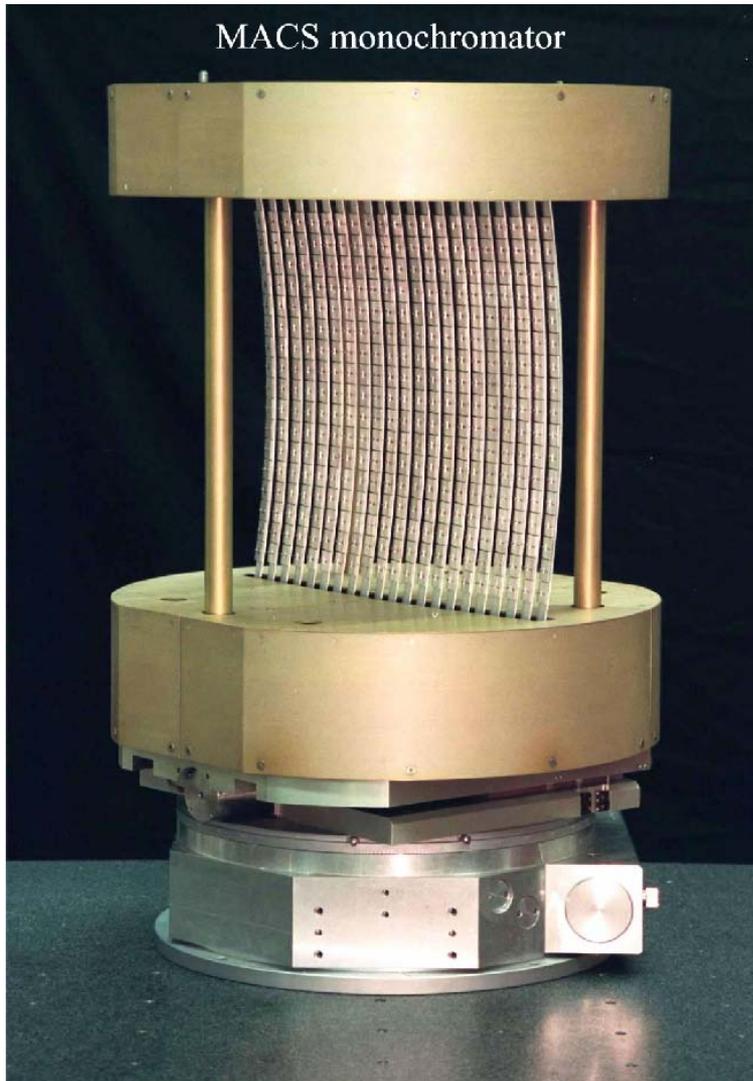


Возможный выигрыш для TOF спектрометров

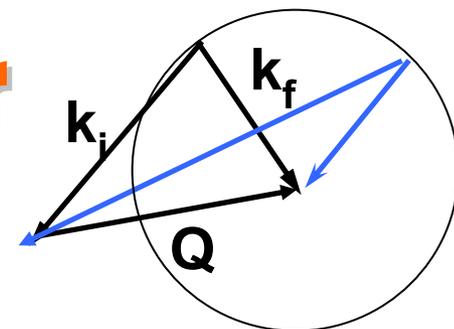
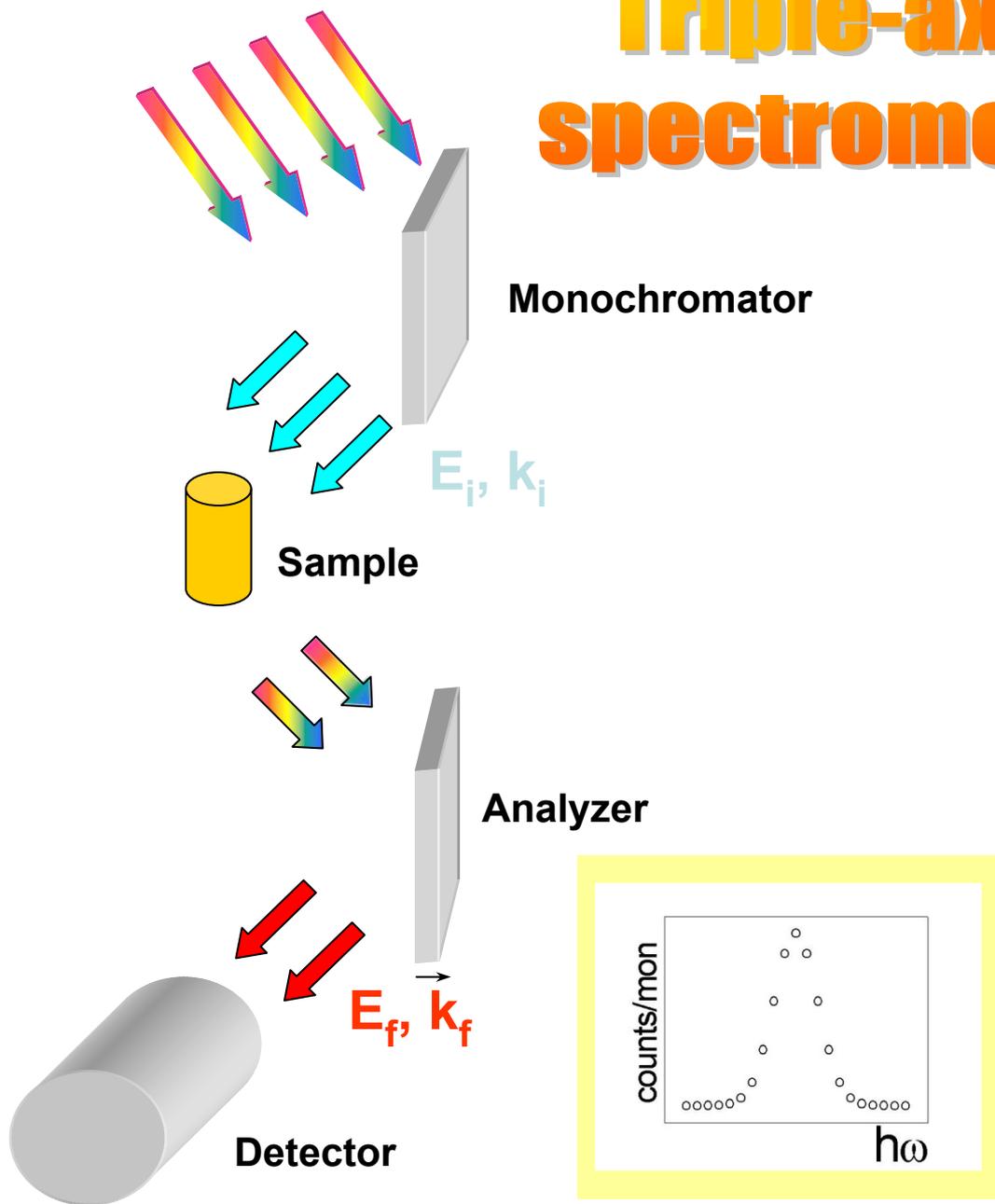
K. Lieutenant et al., ICANS XX poster

2.86 ms @ 14 Hz	Diffraction	SANS	Spectroscopy (direct)	Spectroscopy (indirect)	Hybrid
Length, m			140 ^{cold} ; 300 ^{therm}	220-300	150
Resolution $\delta\lambda/\lambda$, %			2 - 5	1 - 3	0.1 - 10
Pulse shaping			No ^{cold} / Yes ^{therm}	Yes(high res) / No(low res)	Yes
Wavelength band, Å			2, 0.9	1.3 - 0.9	1.9
Multiplication			RRM	No	RRM
Gain			$\leq 25^{\text{cold}}$, $\leq 12^{\text{therm}}$	$\leq 25^{\text{cold}}$, $\leq 13^{\text{therm}}$	5-10, 1-3, 12-25

Альтернативный подход - использование кристаллов для монохроматизации и анализа по энергии



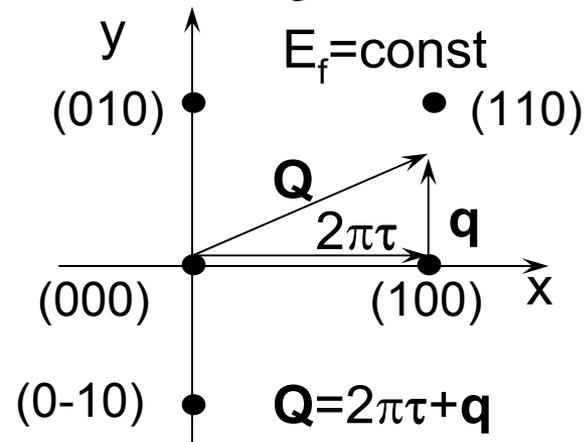
Triple-axis spectrometer



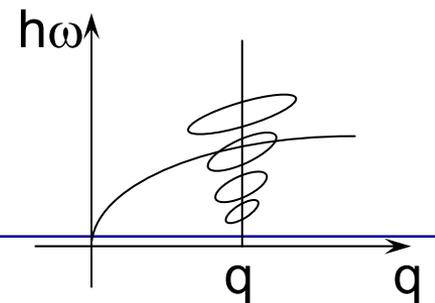
$Q = \text{const}$

t

$E_f = \text{const}$



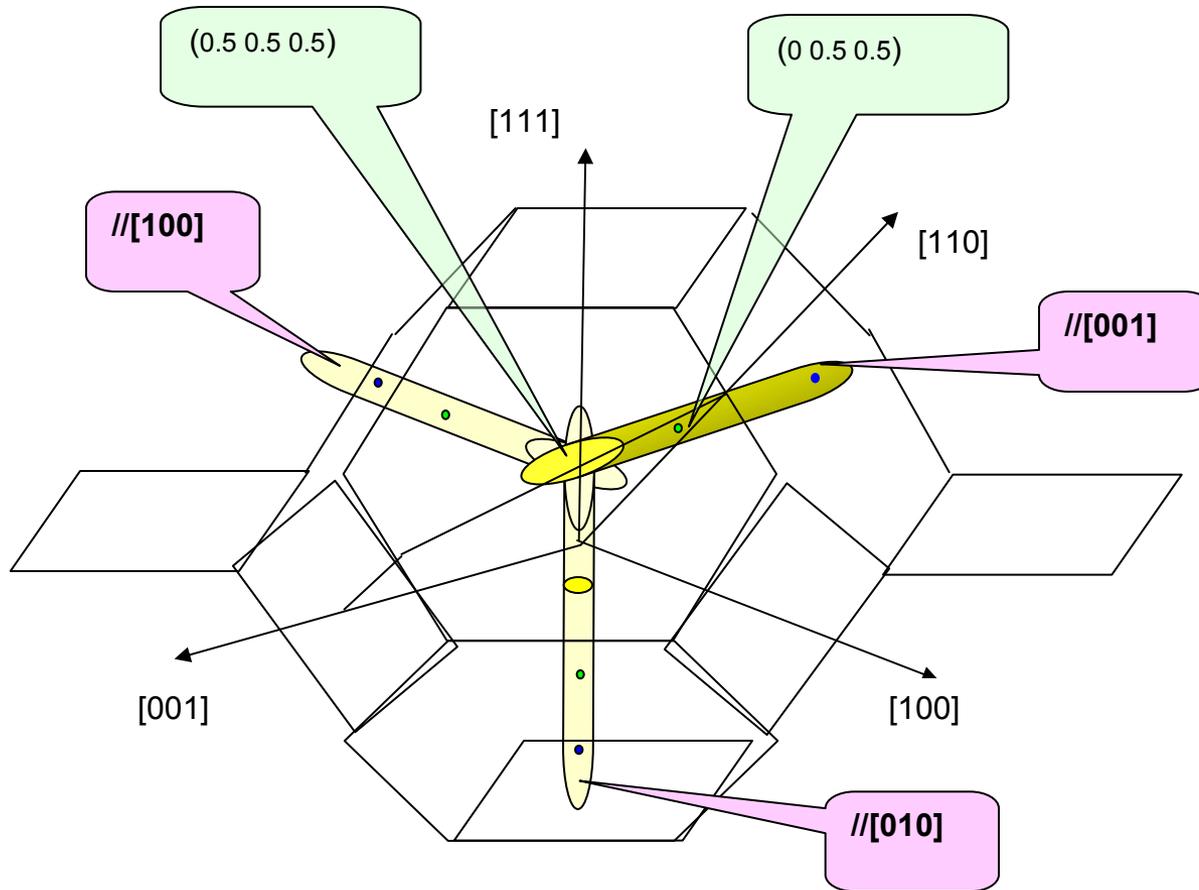
$Q = 2\pi\tau + q$



Классический ТАС



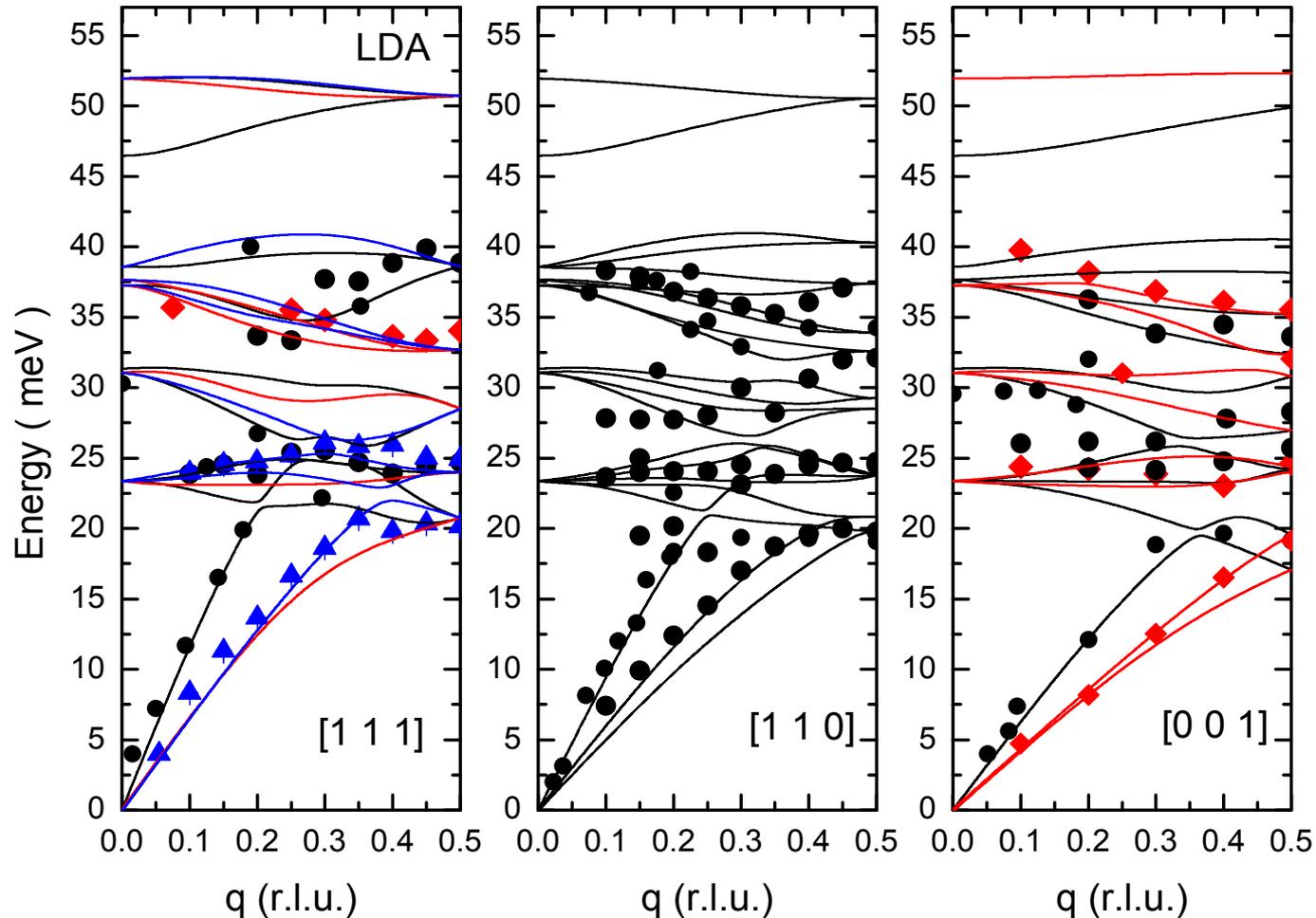
Измерения на ТАС - профессионал выбирает перспективные области в обратном пространстве



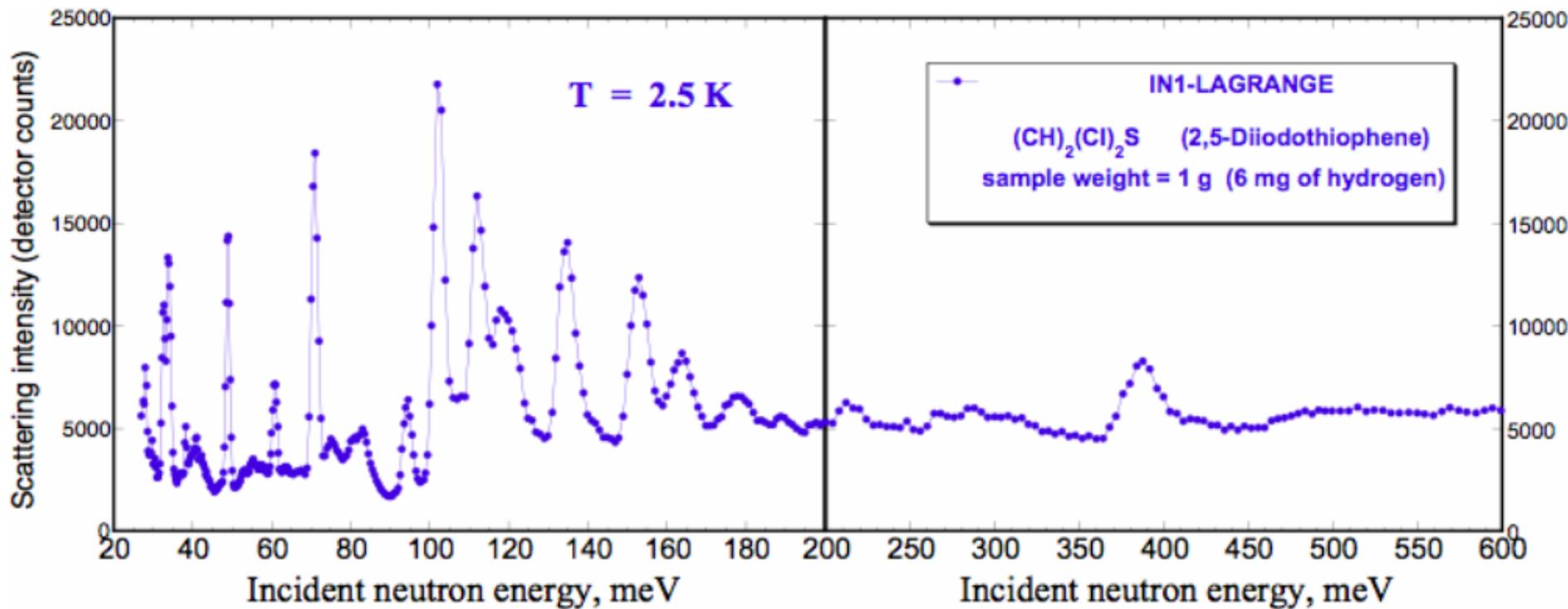
Пример. Динамика решетки геликоидального магнетика MnSi

символы - эксперимент на IN8 (ILL)

линии - расчет в LDA приближении функционала плотности



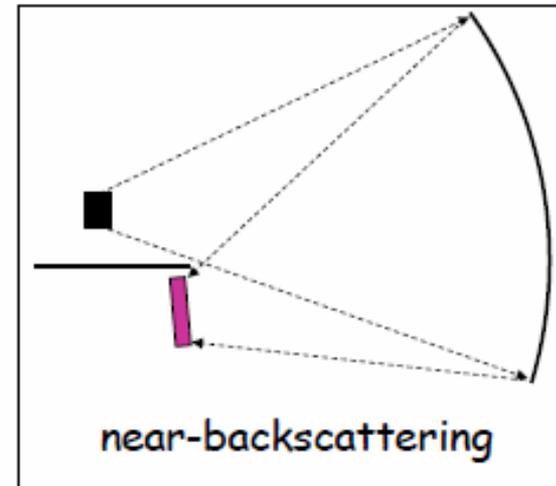
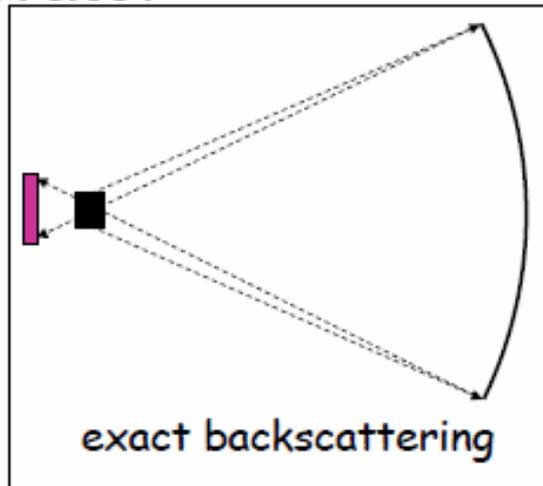
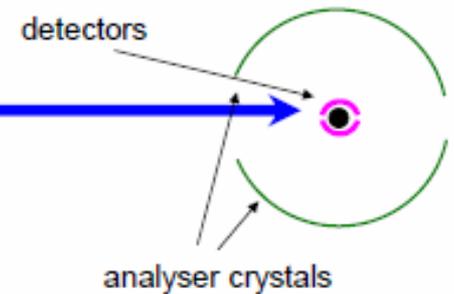
Демонстрация возможностей. Водородсодержащий образец



Данные предоставлены А. Ивановым (ILL)

Приборы обратного рассеяния (Backscattering)

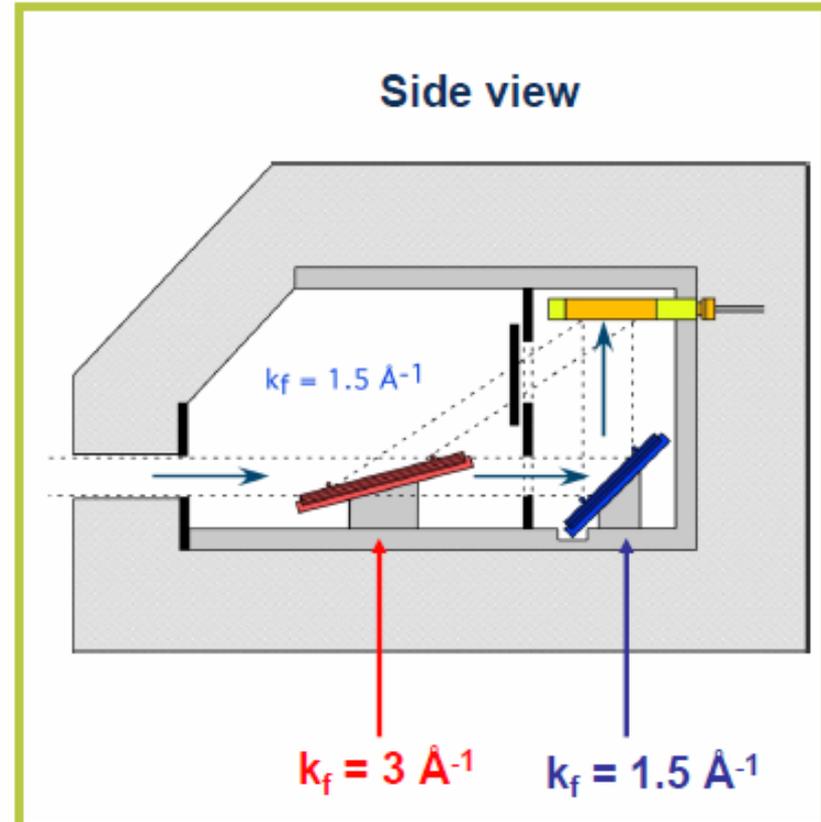
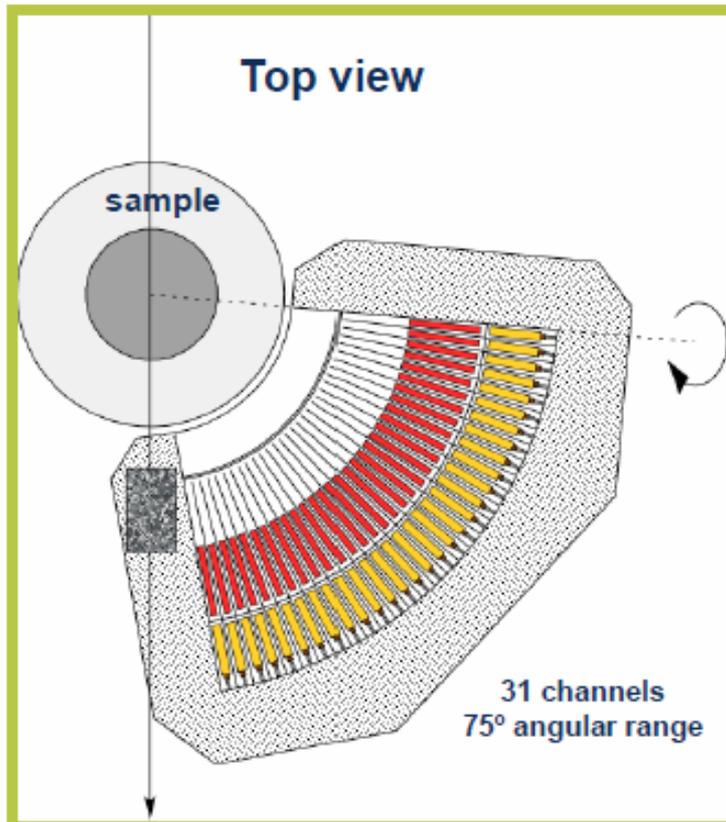
High k_i resolution:
long instrument on sharp
moderator



Приборы обратного рассеяния (Backscattering)



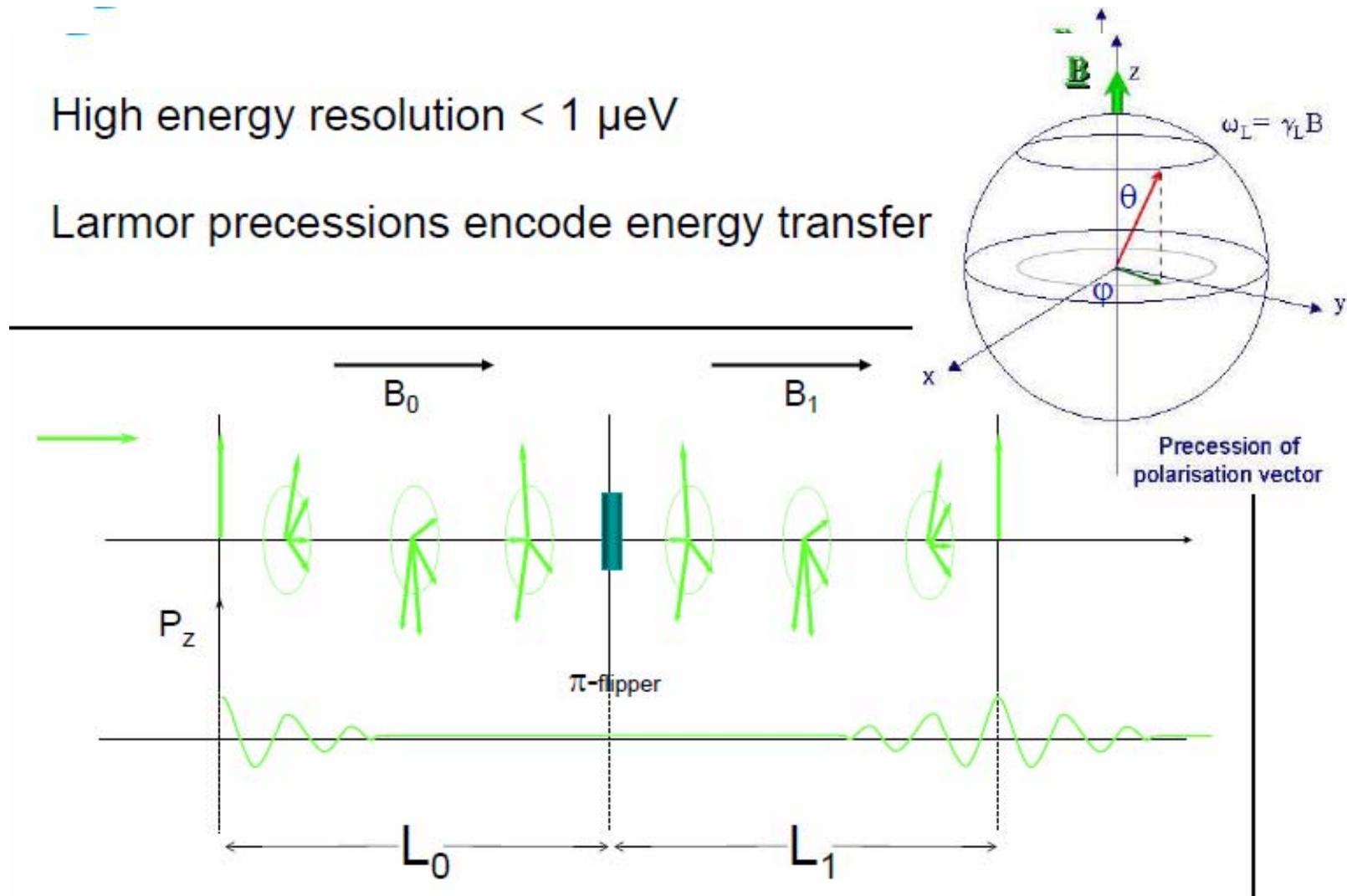
IN20 flat-cone multi-analyser



Спин-эхо приборы (SE)

High energy resolution $< 1 \mu\text{eV}$

Larmor precessions encode energy transfer

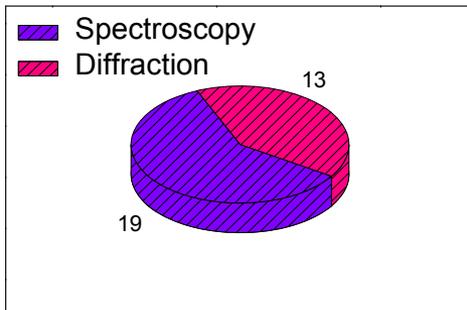


Пример гибридного ТАС

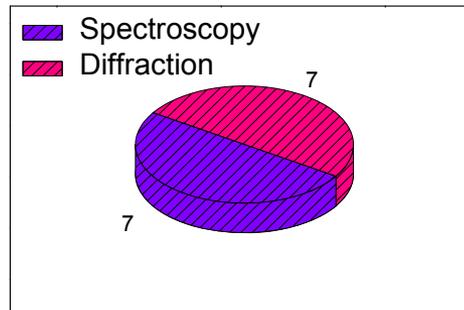


Нейтронные спектроскопия и дифракция, соотношение в мире

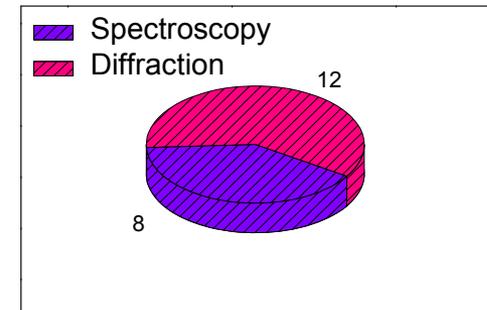
HFR, Institute Laue Langevin



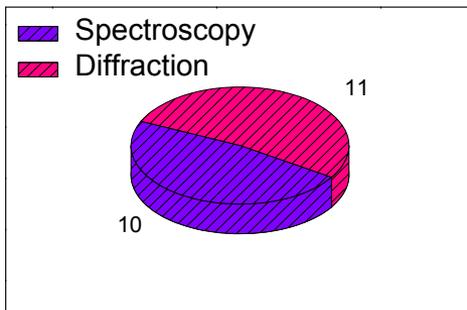
SNS, Oak Ridge



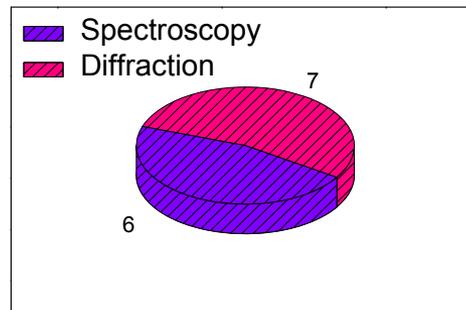
ISIS-1&2, RAL



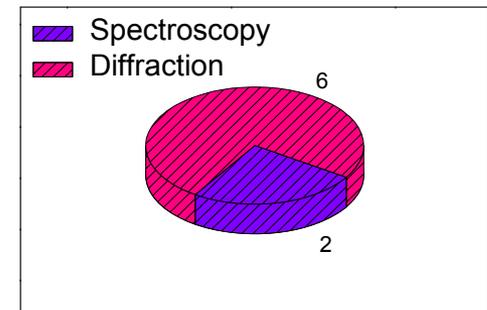
FRM-II, MLZ



JSNS, J-PARC

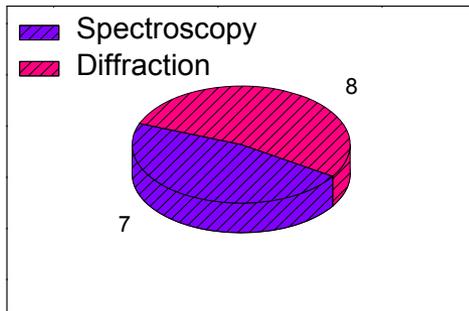


IBR-2, JINR

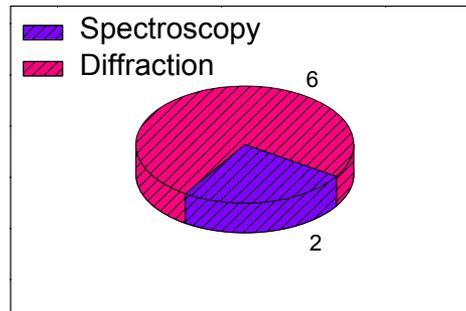


Нейтронные спектроскопия и дифракция, соотношение в мире и в РФ

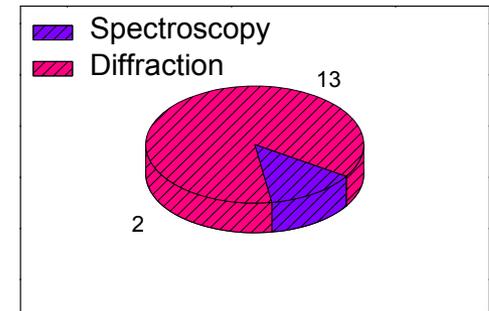
ESS, 1st stage



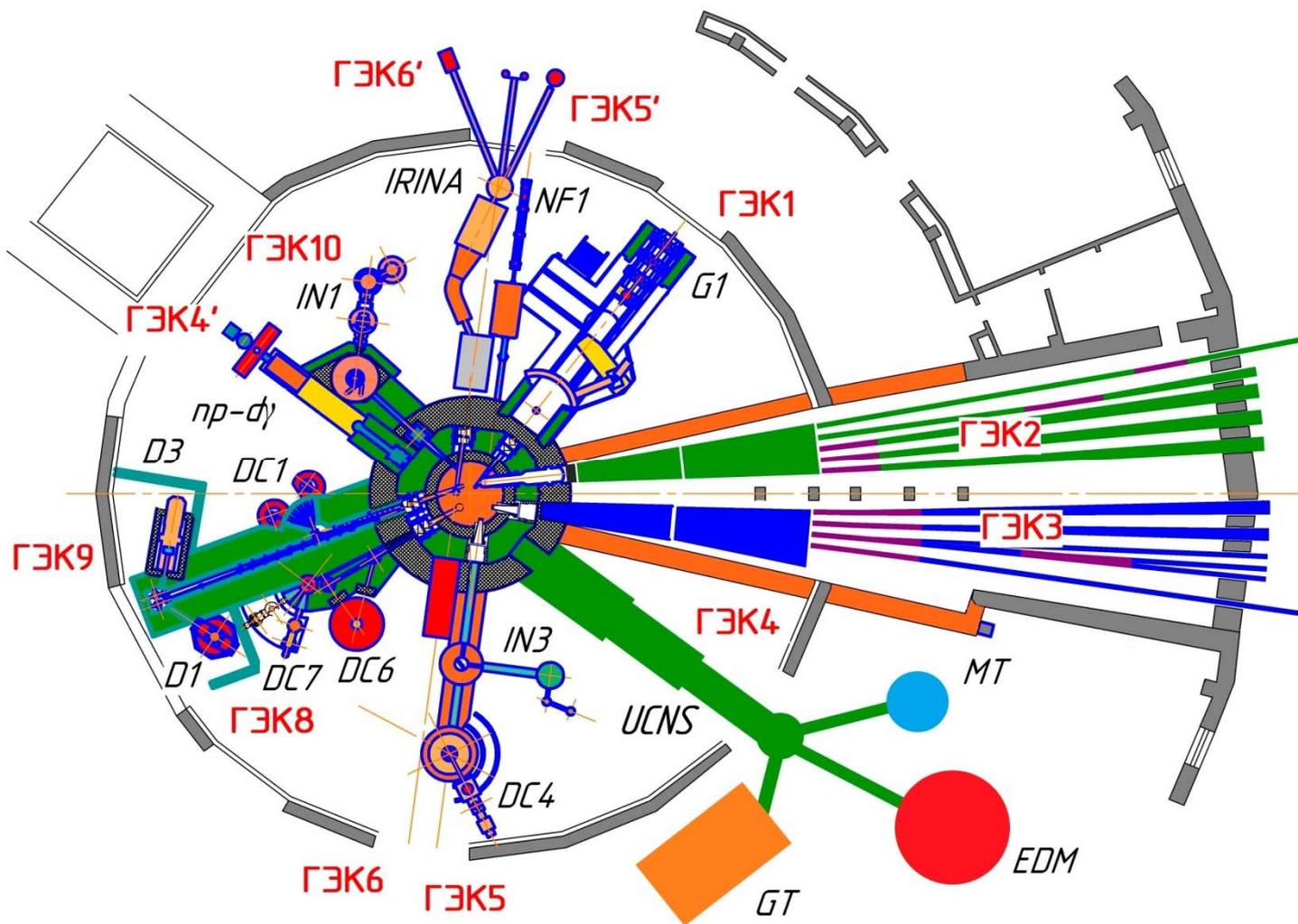
IBR-2, JINR



Russian Federation

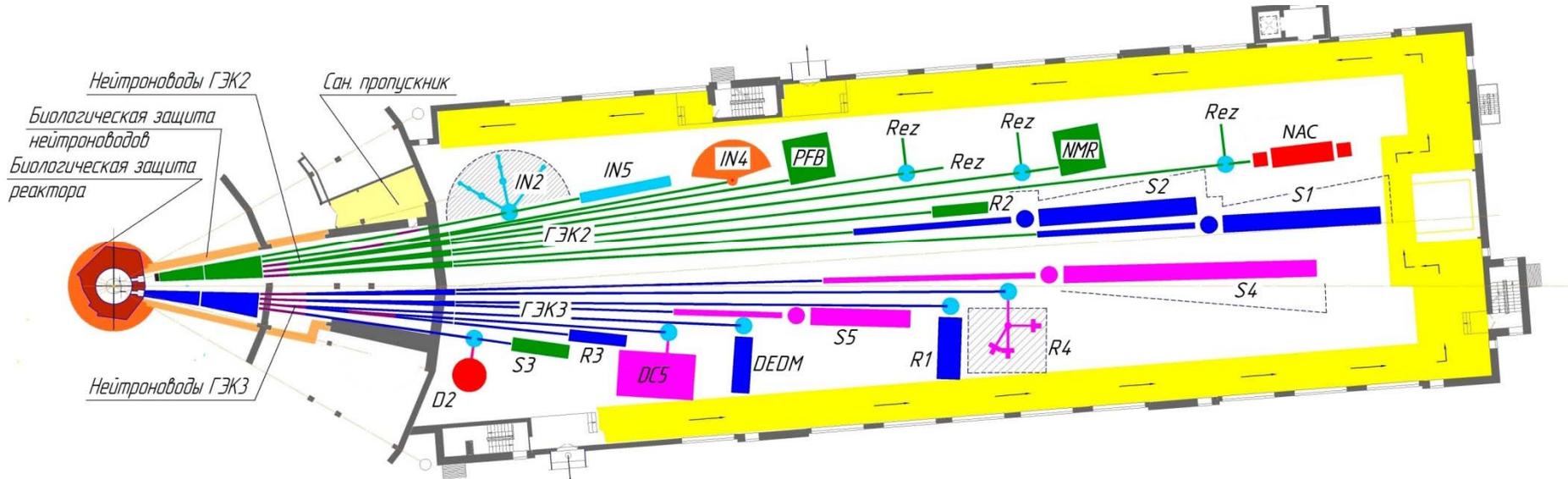


Приборы на реакторе ПИК. Реакторный зал



М.В. Ковальчук, В.Л. Аксенов, В.М. Самсонов и др., Препринт ФГБУ ПИЯФ 2013

Приборы на реакторе ПИК. Нейтронный зал



М.В. Ковальчук, В.Л. Аксенов, В.М. Самсонов и др., Препринт ФГБУ ПИЯФ 2013

Нейтронная спектроскопия на реакторе ПИК

хорошие новости для ПИКа:

- в мире накоплен большой опыт по созданию и эксплуатации спектрометров НРН
- реактор HFR (ILL) близок по параметрам к реактору ПИК, выявлены плюсы и минусы многих конструктивных схем спектрометров

настораживающие новости:

- источники нейтронов испарительно-скалывающего (spallation) типа быстро прогрессируют и, по-видимому, побеждают в конкуренции с реакторами
- возможно увеличение эффективности TOF спектрометров на "spallation" источниках в 20-25 раз за счет мультиплицирования импульсов (при переходе к длинным импульсам и большим пролетным базам)
- позиционно-чувствительные детекторы с площадью в десятки (30-50) м² стали баснословно дороги

Нейтронная спектроскопия на реакторе ПИК

Базовые принципы:

- необходимо возродить методику НРН в стране
- нужно иметь все основные типы приборов НРН хотя бы с целью обучения и поддержания технологий
- нет смысла копировать распределение приборов НРН по типам, сложившееся в настоящий момент в ILL, нужна собственная ниша и лидерство хотя бы в одном направлении НРН
- компромисс цена-производительность или максимальное качество?

Возможные решения и приоритеты:

- отказ от большого числа TOF "сканеров возбуждений"
- акцент на кристалльные спектрометры - TAS разных типов, гибриды, приборы с гибкой схемой - **инструменты для профессионалов**

Некоторые выводы

- современная ФКС немыслима без нейтронной спектроскопии
- спектрометрам реактора ПИК придется конкурировать с TOF-"сканерами возбуждений" чудовищной производительности
- простое копирование распределения по типам приборного парка реактора HFR (ILL) - ложный путь
- основные типы спектрометров НРН должны быть представлены на ПИКе хотя бы в одном экземпляре (обучение и поддержание технологий)
- акцент на приборы для профессионалов - кристалльные спектрометры, гибриды, гибкие схемы



СПАСИБО ЗА ВНИМАНИЕ!