

# Sipanje nevtronov \*

Marko Žnidarič

24. januar 2001

## 1 Zakaj nevtroni?

Kristal je v osnovi sestavljen iz dveh sistemov, ki sta med seboj bolj ali manj sklopljena. Prvi sistem so *elektroni*, drugi pa *atomi*, ki tvorijo kristalno mrežo. Tukaj uporabljam pojem atomi nekoliko ohlapno. Mislim na dele atomov, ki tvorijo kristalno mrežo, medtem ko npr. valenčne elektrone štejem k prvemu sistemu. Ključna razlika med obema sistemoma je masa njunih sestavnih delov. Masa elektronov je v primerjavi z maso atomov zelo majhna. To pomeni, da je gibljivost elektronov v primerjavi z atomi zelo velika. Z drugimi besedami, časovne skale gibanja elektronov oziroma njihove hitrosti so tipično procent svetlobne hitrosti, medtem ko je gibanje kristalne mreže bistveno počasnejše. To nam, na srečo fizikov, zelo poenostavi obravnavo. Če nas zanima dinamika kristalne mreže, potem le ta "čuti" le nek povprečen vpliv elektronov, to je njihovo povprečje čez dolgi čas (s stališča elektronov). Ponavadi rečemo, da velja t.i. adiabatski približek, elektroni so vseskozi v lokalnem ravnovesju. Na drugi strani je podobno, če nas zanimajo lastnosti elektronov. Za njih kristalna mreža praktično miruje, torej lahko elektrone obravnavamo, kot da bi bili v statični kristalni mreži. Vidimo torej, da lahko smiselno govorimo o *lastnih stanjih* in energijah elektronov in kristalne mreže posebej, in ni potrebno iskati lastnih stanj celotnega sklopljenega sistema. To seveda ne pomeni, da elektroni in kristalna mreža niso sklopljeni, nasprotno, lahko so zelo močno sklopljeni, le njihove življenske zgodbe se dogajajo na različnih časovnih nivojih. Osnovni podatki o neki snovi, ki so potem osnova za vse ostalo, so torej lastne energije elektronov in lastne energije kristalne mreže. Lastnim vzbuditvam kristalne mreže pravimo fononi, njihove energije pa označimo z  $\hbar\omega_i$ . Ena izmed osnovnih nalog je torej poiskati energije mrežnih nihanj. Sipanje nevtronov nam omogoča prav to.

Zakaj ravno sipanje nevtronov? Seveda nevtroni niso edina možna izbira, lahko uporabimo tudi elektromagnetno valovanje, npr. rentgensko svetlobo ali pa vidno. Pri sipanju kakršnih koli delcev, bo njihova sprememba energije istega velikostnega reda, kot so energije fononov. Za natančno merjenje je torej ugodno, če je energija sipanih delcev približno enaka energiji fononov. Na drugi strani pa mora biti tudi valovna dolžina delcev primerljiva z medmrežnimi razdaljami, če naj razločimo vzbuditve s kratkimi valovnimi dolžinami. Imamo torej dve zahtevi. Pri rentgenski svetlobi je valovna dolžina prava, je pa energija fotonov veliko prevelika ( $\sim 10keV$ ). To sicer ne bi bila posebna ovira, če bi znali meriti energije rentgenskih fotonov zelo natančno, a žal je to tehnično izredno težko, če ne že nemogoče. Na drugi strani imajo fotoni vidne svetlobe ravno prave energije, imajo pa nekaj tisočkrat preveliko valovno dolžino. To pomeni, da lahko z njimi sondiramo le vzbuditve z zelo dolgimi valovnimi dolžinami oz. nizkimi frekvencami. V žargonu trdne snovi zato pravimo, da lahko z vidno svetlobo delamo spektroskopijo le v središču Brillouinove cone. Taki

---

\*nalog a za predmet *Spektroskopija trdne snovi* pri prof. Blincu

tehniki sta npr. Ramansko in Brillouinovo sipanje. Nevtroni imajo na drugi strani ravno pravo valovno dolžino in hkrati tudi energijo. Termični nevtroni imajo že po definiciji energije termičnih vzbuditev, hkrati pa imajo tudi valovne dolžine reda mrežnih razdalj. Razlika med fotoni in nevtroni je v tem pogledu zgolj zaradi kinematične zveze med energijo in gibalno količino, ki je za nevtrone oz. fotone sledeča

$$E_n = \frac{p_n^2}{2m_n}, \quad E_\gamma = p_\gamma c. \quad (1)$$

Imajo pa nevtroni še eno veliko prednost. To je sklopitev oziroma sila s katero delujejo. Nevtroni so sklopljeni z jedri z močno jedrsko silo, hkrati pa še preko magnetnega momenta z drugimi magnetnimi momenti v kristalu. Fotoni pa so na drugi stani sklopljeni preko elektromagnetne sklopitve, torej tudi z elektroni. To pa zelo oteži analizo elektromagnetnih sipanj, saj moramo, če hočemo le prispevek mrežnih nihanj, najprej odšteti vse prispevke sipanj na elektronih. Nevtroni so torej sklopljeni praktično le z delom kristala, katerega lastna stanja nas zanimajo. Iz do sedaj povedanega bi lahko sklepali, da so nevtroni idealni za ugotavljanje energij fononov. Seveda ni vse tako lepo kot se zdi. Fotoni so vseeno nepogrešljivi takrat, ko nevtroni odpovejo. Npr. za  $^3\text{He}$  je presek za absorpcijo nevtronov veliko večji, kot pa je sipalni presek, tako da je v tem primeru npr. rentgensko sipanje idealna sonda. Imajo pa nevtroni še eno pomanjkljivost. Ni jih ravno preprosto dobiti, ponavadi rabimo za to reaktor. Težko pa si je predstavljati, da bo imel vsak laboratorij na razpolago svoj reaktor, kot je to npr. z raznimi fotonскими izviri. Sipanje nevtronov je torej razmeroma draga in težje dostopna zadeva.

## 2 Uporaba nevtronov

Kot izvir nevtronov ponavadi služi reaktor. Fluks nevtronov, ki ga dobimo iz reaktorja je okoli  $10^{15}$  nevtronov/ $cm^2s$ , njihove energije pa so v območju  $1 - 300\text{meV}$ . Ponavadi se uporablja spektrometer s tremi vrtljivimi osmi. Prva os se uporablja pri izbiri začetne energije nevtronov, druga os nam da dejanski sipalni kot, tretja os pa se uporabi na analizatorju za ugotavljanje končne energije. Včasih se uporablja tudi spektrometer s dvema osema, pri katerem nimamo analizatorja. S takim spektrometrom torej ne moremo izmeriti končne energije nevtronov. Kot monokromator in analizator se uporablja kar elastično sipanje na kristalu, lahko pa se energija nevtronov doloži tudi iz hitrosti, ki jo dobimo iz izmerjenega časa preleta.

Nevtrone z velikimi energijami pa lahko dobimo tudi iz pospeševalnika. Če s protoni (energije  $\approx 800\text{MeV}$ ) streljamo na težko tarčo (iz npr.  $^{238}\text{U}$ ), dobimo med drugim tudi nevtrone z energijami od  $10\text{meV}$  pa vse do  $10\text{MeV}$ . Tak pulzni vir nevtronov nam da kratke pulze nevtronov, ki trajajo  $1 - 50\mu s$ , dobimo pa jih nekaj deset na sekundo. Nevtroni z večjimi energijami imajo manjše valovne dolžine, tako da navadni kristalni monokromatroji niso več dobri. Za merjenje energije se tako uporablja čas preleta. Zaradi izjemno majhne valovne dolžine nevtronov, je možna zelo velika resolucija. Tako lahko dobimo npr. trenutno sliko porazdelitve protona v vodikovi vezi, kar z ostalimi metodami ni mogoče, saj nam dajo kvečjemu neko krajevno in časovno povprečje.

Omenili smo že, da je osnovna količina ki jo merimo z nevtroni, fononski spekter. Ker je veliko stvari v kristalu odvisnih od spektra fononov, lahko preko njega posredno merimo razne lastnosti. Na drugi strani pa je sam spekter odvisen od strukture kristala, kar pomeni, da se bo sprememba strukture kristala odražala tudi v spremembi fononskega spektra. To s pridom izkoriščamo pri študiju strukturnih faznih prehodov. Povedali smo že, da nevtron interagira z okolico tudi preko svojega magnetnega momenta. To pomeni, da lahko preko magnetne sklopitve nevtrona opazujemo tudi magnetne vzbuditve. Take vzbuditve so npr. fluktuacije magnetnega momenta oziroma spinski

valovi. Pri dovolj nizkih temperaturah pride tudi do ureditve jedrskih magnetnih momentov, tako da lahko merimo lastne vzbuditve le teh. Možno je meriti tudi elektronske fluktuacije. Nevtroni sicer niso neposredno sklopljeni z elektroni, so pa ti s kristalno mrežo, tako da lahko posredno merimo tudi lastnosti elektronov. Zanimiva je tudi uporaba sipanja nevtronov na bioloških sistemih in polimerih. Skoraj vsi biološki sistemi in pa polimeri so sestavljeni iz velikih količin vodika. Sipalni presek za sipanje rentgenske svetlobe je za vodik v primerjavi z težjimi atomi majhen. To pomeni, da bomo v sipanju rentgenske svetlobe imeli predvsem prispevek težjih atomov. Podobno je pri sipanju elektronov, medtem ko je z nevtroni drugače. Nekaj karakterističnih sipalnih dolžin  $b$  ( $\sigma \propto b^2$ ) za sipanje nevtronov in pa rentgenske svetlobe je v tabeli (1).

el.	$b_n [10^{-12} \text{ cm}]$	$b_\gamma [10^{-12} \text{ cm}]$
H	-0.37	0.28
$^2\text{H}$	0.67	0.28
C	0.66	1.69
O	0.58	2.25

Tabela 1: Sipalne dolžine za sipanje nevtronov  $b_n$  in  $\gamma$ -fotonov  $b_\gamma$ .

sistem oz. polimer. Ker pa se presek med obema razlikuje, lahko iz spremembe sipanja sklepamo na lego vodika. Že nekajkrat smo omenili sipalni presek. To je fizikalna količina, ki jo v sipalnih poizkusih merimo. Če hočemo torej primerjati rezultate eksperimenta z nekimi teoretičnimi modeli, moramo znati izračunati sipalni presek.

Lepo lahko vidimo, da je sipalna dolžina za sipanje nevtronov na vodiku istega reda, kot za sipanje na ostalih elementih, medtem ko je to razmerje pri sipanju rentgenske svetlobe bistveno bolj neugodno. To pomeni, da so nevtroni zelo primerni za ugotavljanje prisotnosti vodika. Še več! Sipalna dolžina za vodik in devterij se razlikuje, to pa pomeni, da lahko devterij uporabimo za izotopsko označevanje. Kemijske lastnosti snovi se ne spremenijo bistveno, če vodik zamenjamo z devterijem, tako da bo to še vedno isti biološki

### 3 Izpeljava sipalnega preseka

Pri sipalnih problemih nas zanima verjetnost za prehod iz začetnega stanja v neko končno stanje, pri čemer je ta prehod posledica delovanja sipalnega potenciala, ki je omejen na majhen del prostora. Sipalni potencial nam v praksi predstavlja neka tarča, na katero pošljemo curek delcev. Daleč pred in za tarčo ni potenciala, torej je valovna funkcija delcev rešitev Schrödingerjeve enačbe za proste delce. Lastne funkcije te so ravni valovi. Začetno stanje delcev torej povemo z začetnim valovnim vektorjem  $\mathbf{k}_i$ , končno stanje pa z  $\mathbf{k}_f$ . Ker daleč od tarče ni interakcije med curkom delcev in tarčo, lahko valovno funkcijo celotnega sistema  $\Psi$  (tarča+delci) pišemo kot produkt valovne funkcije tarče  $\Phi$  in valovne funkcije delca  $\phi$  :

$$\begin{aligned}\Psi_i &= \Phi_i \phi_i = \frac{1}{\sqrt{V}} \exp(i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}) \Phi_i \\ \Psi_f &= \Phi_f \phi_f = \frac{1}{\sqrt{V}} \exp(i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}) \Phi_f,\end{aligned}\tag{2}$$

kjer indeks  $i$  pomeni začetek (delec je daleč pred tarčo),  $f$  pa konec (delec se je sipal in je daleč od tarče). Hkrati še uvedimo dve oznaki,  $E_{i,f}$  naj bo energija tarče pred in po sipanju,  $\hbar\omega$  sprememba energije sipanega delca,  $\hbar\mathbf{q}$  pa sprememba gibalne količine delca, torej

$$\hbar\omega = \frac{\hbar^2}{2m_n}(\mathbf{k}_f^2 - \mathbf{k}_i^2), \quad \hbar\mathbf{q} = \hbar(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i),\tag{3}$$

kjer je  $m_n$  masa sipanih delcev.

Strogo vzeto je valovna funkcija celotnega sistema produkt posameznih valovnih funkcij le pred sipanjem, po sipanju pa sta stanji tarče in sipanega delca korelirani. Namesto produkta valovnih

funkcij bi torej morali uporabiti gostotno matriko, pri čemer bi bili matrični elementi gostotne matrike kar sipalne verjetnosti. Ker pa nas na koncu ne bo zanimalo stanje tarče, bomo verjetnosti za prehode sešteli čez vsa končna stanja tarče  $\Phi_f$ . V tem primeru pa je rezultat enak, kot če delamo kar s produkti končnih stanj.

Če označimo potencial med tarčo in sipanim delcem na mestu  $\mathbf{r}$  z  $\hat{V}(\mathbf{r})$ , potem je verjetnost za prehod  $S_{if}$  iz začetnega stanja  $i$  v končno stanje  $f$  enaka

$$S_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \Psi_f | \hat{V} | \Psi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i + \hbar\omega) \frac{V d^3 \mathbf{p}_f}{(2\pi\hbar)^3}. \quad (4)$$

Delta funkcija poskrbi za ohranitev energije, zadnji ulomek pa je gostota končnih stanj za sipani delec. Fizikalna količina, ki jo lahko merimo pa ni verjetnost za sipanje  $S_{if}$ , temveč sipalni presek  $d\sigma/d\Omega dE$ , ki nam pove število sipanih delcev v prostorski kot  $d\Omega$  in energijski interval  $dE$  deljeno z vpadnim tokom delcev. Ker nas ne zanima končno stanje tarče, bomo verjetnosti sešteli čez vsa možna končna stanja tarče  $\Phi_f$ . Hkrati je ponavadi tudi za začetno stanje tarče znana le verjetnost  $\rho(\Phi_i)$ , da imamo tarčo v stanju  $\Phi_i$ . Največkrat je  $\rho(\Phi_i) = \exp(-\beta E_i)/Z$ , torej kar kanonična porazdelitev pri inverzni temperaturi  $\beta = 1/k_B T$ . Takšno porazdelitev bomo predpostavili tudi mi. Za sipalni presek torej velja

$$\sum_{\Phi_f, \Phi_i} \rho(\Phi_i) S_{if} = j d\Omega dE \frac{d\sigma}{d\Omega dE}, \quad (5)$$

kjer smo z  $E$  označili energijo sipanega delca na koncu, to je  $E = \hbar^2 \mathbf{k}_f^2 / 2m_n$ ,  $j$  pa je vpadni tok delcev,  $j = \hbar k_i |\phi_i|^2 / m_n$ . Za sipalni presek dobimo torej naslednji izraz

$$\frac{d\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_f}{k_i} b^2 \sum_{\Phi_f, \Phi_i} \rho(\Phi_i) |\langle \Phi_f | \hat{V}(\mathbf{q}) | \Phi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i + \hbar\omega), \quad (6)$$

kjer smo izvršili skalarni produkt med valovnimi funkcijama curka. Operator  $\hat{V}(\mathbf{q})$  je Fourierova transformiranka operatorja potenciala, to je

$$\hat{V}(\mathbf{q}) = \frac{m_n}{2\pi\hbar^2 b} \int \hat{V}(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) d^3 \mathbf{r}. \quad (7)$$

Operator  $\hat{V}(\mathbf{q})$  je brez enot, kar smo dosegli s tem, da smo iz potenciala  $\hat{V}(\mathbf{r})$  izpostavili faktor z enoto energije  $2\pi\hbar^2 b / m_n V$ . Pri tem je  $b$  nek faktor z enoto dolžine, pravimo mu tudi sipalna dolžina. Izraz (6) za sipalni presek lahko zapišemo še v nekoliko elegantnejši obliki. Namesto delta funkcije pišemo

$$\delta(E_f - E_i + \hbar\omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(i\omega t) \exp(i(E_f - E_i)t/\hbar), \quad (8)$$

časovno odvisnost pa preselimo od valovnih funkcij k operatorjem, čemur ponavadi rečemo Heisenbergova slika. Časovno odvisni operatorji, npr. potenciala, so torej

$$\hat{V}(t) = \exp(i\hat{H}t/\hbar) \hat{V} \exp(-i\hat{H}t/\hbar), \quad (9)$$

kjer je  $\hat{H}$  Hamiltonov operator za tarčo (npr. kristal). Hkrati še upoštevamo  $\sum_{\Phi_f} |\Phi_f\rangle \langle \Phi_f| = \hat{1}$ , in dobimo

$$\boxed{\frac{d\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_f}{k_i} \frac{b^2}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \langle \hat{V}^\dagger(\mathbf{q}, 0) \hat{V}(\mathbf{q}, t) \rangle_\beta \exp(i\omega t) dt.} \quad (10)$$

To ponavadi zapišemo kot

$$\frac{d\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_f}{k_i} \frac{1}{\hbar} S(\mathbf{q}, \omega), \quad (11)$$

kjer smo definirali sipalno funkcijo  $S(\mathbf{q}, \omega)$  (včasih se definicija razlikuje za kakšno konstanto). Kanonično povprečje čez začetna stanja tarče smo označili kot

$$\langle \hat{V}^\dagger(\mathbf{q}, 0) \hat{V}(\mathbf{q}, t) \rangle_\beta = \sum_{\Phi_i} \rho(\Phi_i) \langle \Phi_i | \hat{V}^\dagger(\mathbf{q}, 0) \hat{V}(\mathbf{q}, t) | \Phi_i \rangle, \quad (12)$$

operator  $\hat{V}^\dagger$  pa je hermitsko adjungiran operator k  $\hat{V}$ , tako da velja  $\langle \psi | \hat{V} \psi \rangle = \langle \hat{V}^\dagger \psi | \psi \rangle$  ( $\hat{V}(q)$  je krajevna Fourierova transformiranka  $\hat{V}(r)$ , in ni nujno hermitski, četudi  $\hat{V}(r)$  je). Izraz (10) za diferencialni sipalni presek je popolnoma *splošen* in velja za sipanje *poljubnih delcev na kakršnikoli tarči*. Velja tako za sipanje nevtronov, kot elektromagnetnega valovanja (gama žarki, vidna svetloba...), prav tako je vseeno kakšna je tarča (plin, kristal, kapljevina...). Vidimo lahko tudi razlog, zakaj smo na prvi pogled umetno vsilili brezdimenzijsko obliko za operator potenciala  $\hat{V}(\mathbf{q})$  (7). V diferencialnem sipalnem preseku (10) ima prvi člen ( $k_f/k_i$ ) popolnoma kinematično naravo, nič ni odvisen od fizikalnega sistema. Tudi drugi del,  $b^2/2\pi\hbar$ , nam ne pove nič o fiziki pojava, uganemo ga lahko že iz dimenzijske analize. Celotna fizika in s tem tudi neskončna pestrost različnih sipalnih poiskusov je vsebovana v brezdimenzijskem tretjem členu. Ta ima obliko Fourierove transformirane avtokorelacijske funkcije potenciala v momentnem prostoru. Krajše lahko povemo, da je diferencialni sipalni presek sorazmeren s spektralno gostoto avtokorelacijske funkcije potenciala. Spektralno gostoto dobimo tako, da naredimo Fourierovo transformacijo po kraju (7), nato pa še po času, vse skupaj pa pogledamo pri frekvenci  $\omega$  in valovnem vektorju  $\mathbf{q}$ , ki sta določena z ohranitvenimi zakoni (3). Še elegantnejšo formulacijo bi dobili, če bi vse skupaj delali relativistično. Tedaj čas in krajevni del nastopata enakovredno, kot vektor četverec.

### 3.1 Sipanje nevtronov na jedrih

Do sedaj je bila izpeljava popolnoma splošna, sedaj pa se bomo lotili konkretnega primera sipanja. Za naše projekte bomo vzeli *nevtrone*, ki interagirajo z jedri z močno jedrsko silo. Sicer ima nevtron tudi magnetni moment, tako da je sklopljen tudi z drugimi magnetnimi momenti, vendar pa bomo na to interakcijo za zdaj pozabili, saj je v snoveh brez magnetnih struktur zanemarljiva. Zapisati moramo torej potencial med jedri atomov in nevtroni. Močna sila je sicer zelo močna, vendar je njen doseg v primerjavi z atomskimi razdaljami zelo majhen, je reda 1 fm. Vse ostale fizikalne razdalje, kot so razdalje med sipalnimi centri in valovna dolžina nevtronov, so približno  $10^5$  krat manjše. Torej lahko za potencial vzamemo kar nek efektivni, kontaktni potencial

$$\hat{V}(\mathbf{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} \sum_i b_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i), \quad (13)$$

kjer je  $b_i$  sipalna dolžina  $i$ -tega jedra,  $\mathbf{r}_i$  pa lega tega jedra. Vsota teče čez vse atome v snovi. Če je naša tarča npr. kristal, je to vsota čez vse Bravaisove vektorje  $\mathbf{R}$ , za vsak  $\mathbf{R}$  pa še čez vse atome v osnovni celici. Potencial  $i$ -tega jedra je torej okarakteriziran zgolj z enim številom, to je sipalno dolžino  $b_i$ . Če sedaj izraz za potencial (13) vstavimo v diferencialni sipalni presek (10), dobimo

$$\frac{d\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_f}{k_i} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(i\omega t) \sum_{i,j} \langle b_i^* b_j \exp\{\mathbf{iq} \cdot \mathbf{r}_i^\dagger(0)\} \exp\{-\mathbf{iq} \cdot \mathbf{r}_j(t)\} \rangle_\beta. \quad (14)$$

Pri tem smo sipalne dolžine pustili znotraj kanoničnega povprečja, saj so tudi te načeloma dinamične spremenljivke. Vendar so sipalne dolžine praktično neodvisne od energije (za termične energije), tako da lahko  $b_i$  postavimo pred termično povprečje. So pa sipalne dolžine odvisne od medsebojne orientacije spinov nevtrona in jedra, razlikujejo se tudi med posameznimi jedri (tudi izotopi), tako da moramo vseeno vzeti neko povprečno vrednost, ki jo bomo označili s črto nad  $b_i$ . Če so jedra na različnih mestih  $i$  in  $j$  nekorelirana, kar dovolj dobro velja, potem je

$$\overline{b_i^* b_j} = \begin{cases} \overline{b_i^*} \overline{b_j} & , i \neq j \\ |\overline{b_i}|^2 & , i = j \end{cases} . \quad (15)$$

Oba primera lahko kompaktno zapišemo z eno formulo

$$\overline{b_i^* b_j} = \overline{b_i^*} \overline{b_j} + \delta_{i,j} \overline{|b_j - \overline{b_j}|^2} . \quad (16)$$

Člen pri  $\delta_{i,j}$  predstavlja fluktuacije sipalne dolžine okoli ravnovesne vrednosti in nam da nekoherentno sipanje, prvi člen pa nam de koherentno sipanje. Torej

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega dE} \right)_{\text{koh.}} = \frac{k_f}{k_i} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(i\omega t) \sum_{i,j} \overline{b_i^*} \overline{b_j} C_{i,j}(\mathbf{q}, t), \quad (17)$$

in nekoherentni sipalni presek

$$\left( \frac{d\sigma}{d\Omega dE} \right)_{\text{nekoh.}} = \frac{k_f}{k_i} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(i\omega t) \sum_i \overline{|b_i - \overline{b_i}|^2} C_{i,i}(\mathbf{q}, t), \quad (18)$$

kjer so avtokorelacijske funkcije  $C_{i,j}$  dane z

$$C_{i,j}(\mathbf{q}, t) = \langle \exp\{\mathbf{iq} \cdot \mathbf{r}_i^\dagger(0)\} \exp\{-\mathbf{iq} \cdot \mathbf{r}_j(t)\} \rangle_\beta . \quad (19)$$

Izraza za koherentno in nekoherentno sipanje (17,18) sta splošna in veljata za *sipanje nevtronov na jedrih poljubne tarče*.

Vidimo, da je koherentni diferencialni sipalni presek vsota  $N^2$  členov ( $N$  je število jeder), torej je sorazmeren z  $N^2$ , medtem ko je nekoherentni presek sorazmeren z  $N$ . To je splošna lastnost koherentnega in nekoherentnega sipanja. Pri *koherentnem* sipanju imamo dobro definirane faze razlike med posameznimi sipalnimi centri, zato seštevamo sipalne amplitude, njihov kvadrat pa nam nato da  $N^2$  interferenčnih členov. Pri *nekoherentnem* sipanju pa so faze med posameznimi sipalnimi centri naključne, tako da seštevamo kvadrate amplitud (verjetnosti), kar nam da le  $N$  členov.

### 3.1.1 Sipanje na harmoničnem kristalu

V kristalu so vsa jedra lepo urejena v Bravaisovo mrežo, tako da je lega  $i$ -tega jedra

$$\mathbf{r}_i = \mathbf{R} + \mathbf{d} + \mathbf{u}_{\mathbf{R},\mathbf{d}}, \quad (20)$$

kjer bomo indeks  $i$  sedaj zamenjali z vektorjem Bravaisove mreže  $\mathbf{R}$  in lego jedra v osnovni celici  $\mathbf{d}$ ,  $\mathbf{u}_{\mathbf{R},\mathbf{d}}$  pa je odmik atoma iz ravnovesne lege. Omejili se bomo na *kristalno tarčo v harmonični aproksimaciji*, torej so lastne funkcije kristala normalni nihajni načini. V kvantni sliki so odmiki  $\mathbf{u}_{\mathbf{R},\mathbf{d}}$  operatorji, ki jih zapišemo s kreacijskimi in anihilacijskimi operatorji za posamezne nihajne

načine. Če imamo  $p$  atomov v osnovni celici, potem imamo  $3pN$  normalnih nihajnih načinov ( $N$  je število osnovnih celic), katerih frekvence označimo z  $\omega_s(\mathbf{k})$ , kjer je  $\mathbf{k}$  vektor v 1.Brillouinovi coni in lahko zavzame  $N$  različnih vrednosti, ki so v skladu z robnimi pogoji. Indeks  $s$  nam pove fononsko vejo, in lahko zavzame  $3p$  vrednosti (od tega so 3 veje akustične). Hamiltonijan je kar vsota  $\hat{H} = \hbar \sum_{\mathbf{k},s} \omega_s(\mathbf{k}) (\hat{a}_s^+(\mathbf{k}) \hat{a}_s(\mathbf{k}) + 1/2)$ . Kvantni operatorji odmikov so vsote čez operatorje normalnih koordinat

$$\hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{R},\mathbf{d}}(t) = \sum_{\mathbf{k},s} \sqrt{\frac{\hbar}{2NM_{\mathbf{d}}\omega_s(\mathbf{k})}} [\hat{a}_s(\mathbf{k}) \exp\{-i\omega_s(\mathbf{k})t\} + \hat{a}_s^+(-\mathbf{k}) \exp\{i\omega_s(\mathbf{k})t\}] \boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{d},s}(\mathbf{k}) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}). \quad (21)$$

Pojasniti je potrebno še nekaj oznak :  $M_{\mathbf{d}}$  je masa atoma na mestu  $\mathbf{d}$  v osnovni celici, operatorja  $\hat{a}$  in  $\hat{a}^+$  pa sta anihilacijski in kreacijski operator, ki uničita oz. ustvarita fonon z ustreznim  $\mathbf{k}$  in v fononski veji  $s$ ,  $\boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{d},s}(\mathbf{k})$  pa je polarizacijski vektor, ki pove smer odmikov ustreznega atoma. Kreacijski in anihilacijski operator zadoščata standardnim bozonskim komutatorjem

$$[\hat{a}_s(\mathbf{k}), \hat{a}_{s'}^+(\mathbf{k}')] = \delta_{s,s'} \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \quad (22)$$

Kanonična pričakovana vrednost njunega produkta pa nam da kar število fononov, oziroma zasedbeno število

$$\langle \hat{a}_s^+(\mathbf{k}) \hat{a}_{s'}(\mathbf{k}') \rangle_{\beta} = \delta_{s,s'} \delta_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} n_s(\mathbf{k}), \quad (23)$$

kjer je  $n_s(\mathbf{k})$  zasedbeno število, ki je v termodinamičnem ravnovesju

$$n_s(\mathbf{k}) = \frac{1}{\exp\{\beta\omega_s(\mathbf{k})\} - 1}. \quad (24)$$

Iz izraza za koordinate (21) vidimo, da so lege ob času  $t$  linearne funkcije začetnih leg oz. kreacijskih in anihilacijskih operatorjev. Za kanonična povprečja tih operatorjev velja v harmonični aproksimaciji [5]

$$\langle \exp\{\hat{A}\} \rangle = \exp\left\{\frac{1}{2}\langle \hat{A}^2 \rangle\right\}. \quad (25)$$

To enakost uporabimo za kanonično povprečje  $\langle \exp\{i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{R},\mathbf{d}}(0)\} \exp\{-i\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{R},\mathbf{d}'}(t)\} \rangle_{\beta}$ . Pri tem še upoštevamo, da je povprečje odvisno le od razlike Bravaisovih vektorjev. Definirajmo še Debye-Wallerjev faktor  $W_{\mathbf{d}}(\mathbf{q})$

$$W_{\mathbf{d}}(\mathbf{q}) = \langle \frac{1}{2} |\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{R},\mathbf{d}}(t)|^2 \rangle_{\beta} = \langle \frac{1}{2} |\mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{0,\mathbf{d}}(0)|^2 \rangle_{\beta}. \quad (26)$$

Za harmonični kristal lahko Debye-Wallerjev faktor izračunamo. Uporabimo izraz za operatorje odmikov (21), pričakovane vrednosti (23), zraven pa še upoštevamo  $\omega_s(\mathbf{k}) = \omega_s(-\mathbf{k})$  ter za polarizacijske vektorje  $\boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{d},s}(\mathbf{k}) = \boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{d},s}^*(-\mathbf{k})$ . Po krajšem računu dobimo

$$W_{\mathbf{d}}(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{k},s} \frac{\hbar}{4NM_{\mathbf{d}}\omega_s(\mathbf{k})} |\mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{d},s}(\mathbf{k})|^2 \coth\left\{\frac{1}{2}\hbar\omega_s(\mathbf{k})\right\}. \quad (27)$$

Sipalno funkcijo (11) lahko sedaj zapišemo kot

$$S(\mathbf{q}, t) = N \sum_{\mathbf{R}} \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}) \sum_{\mathbf{d}, \mathbf{d}'} \exp\{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{d} - \mathbf{d}')\} \exp\{-W_{\mathbf{d}}(\mathbf{q}) - W_{\mathbf{d}'}(\mathbf{q})\} \cdot \bar{b}_{\mathbf{d}}^* \bar{b}_{\mathbf{d}'} \exp\langle \mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{0, \mathbf{d}}^\dagger(0) \mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{R}, \mathbf{d}'}(t) \rangle_\beta. \quad (28)$$

Eksponentni faktor lahko razvijemo v Taylorjevo vrsto

$$\exp\langle \mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{0, \mathbf{d}}^\dagger(0) \mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{R}, \mathbf{d}'}(t) \rangle_\beta = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{m!} \left( \langle \mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{0, \mathbf{d}}^\dagger(0) \mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{R}, \mathbf{d}'}(t) \rangle_\beta \right)^m. \quad (29)$$

Z malo domišljije lahko vidimo, da bomo imeli v  $m$ -tem členu produkt  $m$  kreacijskih in anihilacijskih operatorjev. Vsak operator deluje le na en fonon, tako da predstavlja  $m$ -ta potenca v razvoju  $m$ -fononski proces, pri katerem je v sipanju udeleženo  $m$  fononov. Ogleдали si bomo le prva dva reda, ki sta najenostavnejša, hkrati pa tudi najpomembnejša.

### 3.1.2 0-fononsko sipanje

Takrat je eksponent kar 1 (0-ti red v razvoju eksponentne funkcije), tako da dobimo za sipalno funkcijo (28)

$$S(\mathbf{q}, \omega) = N^2 |G(\mathbf{q})|^2 \delta(\omega) \sum_{\mathbf{K}} \delta_{\mathbf{q}, \mathbf{K}}, \quad (30)$$

s strukturnim faktorjem  $G(\mathbf{q})$ , ki je lastnost ene osnovne celice, podanim z

$$G(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{d}} \bar{b}_{\mathbf{d}} \exp(-W_{\mathbf{d}}) \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{d}). \quad (31)$$

Delta funkcija v sipalni funkciji (30) nam zapove ohranitev energije nevtrona. Vsota Kronekerjevih simbolov po vseh vektorjih  $\mathbf{K}$  *recipročne mreže* pa nam da še drugi ohranitveni zakon.

$$\mathbf{q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i = \mathbf{K}. \quad (32)$$

To je natanko Braggov pogoj za elastično sipanje, ki ga dobro poznamo iz sipanja rentgenske svetlobe na kristalih. Nova stvar je le Debye-Wallerjev faktor, ki nam zniža višino uklonskih vrhov zaradi termičnega nihanja. Z besedami lahko torej povemo, da nam 0-fononsko sipanje da *elastično* (energija se ohrani), *koherentno* ( $\sigma \propto N^2$ ) sipanje na kristalu.

### 3.1.3 1-fononsko sipanje

To je sipanje, pri katerem pride do interakcije z le enim fononom. V tem primeru moramo izvednotiti člen  $\langle \mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{0, \mathbf{d}}^\dagger(0) \mathbf{q} \cdot \hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{R}, \mathbf{d}'}(t) \rangle_\beta$ . Uporabimo izraz za operatorje odmikov (21) in pričakovane vrednosti kreacijskega in anihilacijskega operatorja (23), ter dobimo sipalno funkcijo

$$S(\mathbf{q}, \omega) = N \sum_{\mathbf{k}, s} |G_{\mathbf{k}, s}(\mathbf{q})|^2 \left( \{n_s(\mathbf{k}) + 1\} \delta(\omega + \omega_s(\mathbf{k})) \sum_{\mathbf{K}} \delta_{\mathbf{q}, \mathbf{K} - \mathbf{k}} + n_s(\mathbf{k}) \delta(\omega - \omega_s(\mathbf{k})) \sum_{\mathbf{K}} \delta_{\mathbf{q}, \mathbf{K} + \mathbf{k}} \right) \quad (33)$$



Tudi tukaj je  $G_{\mathbf{k},s}(\mathbf{q})$  strukturni faktor ene osnovne celice, ki pa je sedaj odvisen od normalnega načina, torej valovnega vektorja fonona  $\mathbf{k}$  in fononske veje  $s$ . Dan je z naslednjim izrazom

$$G_{\mathbf{k},s}(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{d}} \sqrt{\frac{\hbar}{2M_{\mathbf{d}}\omega_s(\mathbf{k})}} \bar{b}_{\mathbf{d}} \exp(-W_{\mathbf{d}}) \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{d}) [\mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{d},s}(\mathbf{k})]. \quad (34)$$

Izraz za sipalno funkcijo (33) eno-fononskih procesov, skupaj s strukturnim faktorjem (34), je *najpomembnejši* rezultat naših izpeljav za sipanje nevtronov na kristalu. Izraz za sipalno funkcijo izgleda na prvi pogled precej glomazno, zato nekaj komentarjev ne bo odveč.

Za začetek je dobro ponoviti, kaj pomenijo posamezni indeksi in oznake. Vsota v sipalni funkciji (33) teče čez vse normalne nihajne načine–fonone. Ti so enolično zaznamovani z valovnim vektorjem  $\mathbf{k}$ , ki lahko zavzame  $N$  različnih vrednosti v 1.Brillouinovi coni, in indeksom  $s$  fononske veje, kateri pripada dan fonon (ta zavzame vrednosti od  $1 \dots 3p$ , če je  $p$  število atomov v osnovni celici). Ker je  $N$  zelo velik, včasih vsoto čez vektorje  $\mathbf{k}$  v 1.Brillouinovi coni nadomestimo kar z integralom čez 1.Brillouinovo cono:

$$\sum_{\mathbf{k}} \iff v_0 N \int \frac{d^3\mathbf{k}}{(2\pi)^3}, \quad (35)$$

kjer je  $v_0$  prostornina ene osnovne celice. To zamenjavo bi lahko naredili v izrazih za sipalno funkcijo (33) in za Debye-Wallerjev faktor (27). V strukturnem faktorju (34) teče vsota čez vse atome v osnovni celici, ki so na mestih z vektorjem  $\mathbf{d}$ , ta vektor pa kaže od izhodišča osnovne celice do atoma. Preostale faktorje v  $G_{\mathbf{k},s}(\mathbf{q})$  že poznamo, razen zadnjega, ki je skalarni produkt sipalnega vektorja  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$  in polarizacije fonona. Če je sipalni vektor pravokoten na polarizacijo nekega fonona, potem ta fonon ne prispeva k sipanju. Oba člena v oklepaju pri izrazu za sipalno funkcijo (33) poskrbita za ohranitvene zakone. Prvi člen predstavlja proces, pri katerem nastane en fonon, drugi pa sipanje kjer pride do absorbcije fonona. Oba sta sorazmerna z zasedbenim številom  $n_s(\mathbf{k})$  (24), ki nam pove kar število fononov v fononski veji  $s$  in z valovnim vektorjem  $\mathbf{k}$ . Obe delta funkciji pomenita ohranitev energije, vsota Kronekerjevih delt pa ohranitev valovnega vektorja, aditivno do vektorja recipročne mreže  $\mathbf{K}$ .

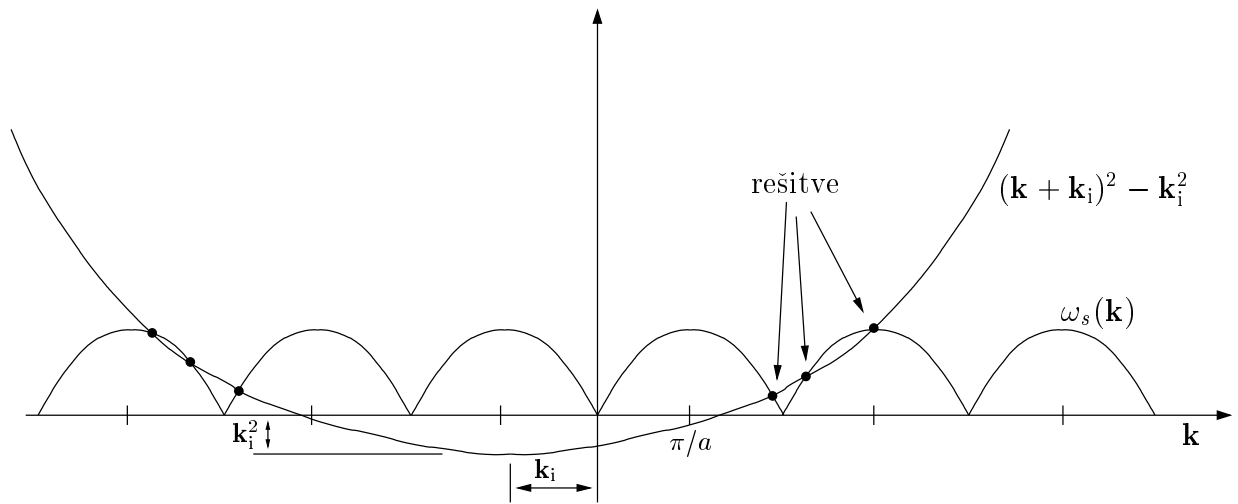
Diferencialni sipalni presek (33) ima v odvisnosti od prenesene energije nevtrona  $\hbar\omega$  *diskretne* vrhove pri frekvencah fononov kristala. Če izmerimo, pri katerih prenosih energije  $\hbar\omega$  imamo v spektru vrhove, dobimo s tem disperzijsko krivuljo za fonone. Vsak vrh v spektru nevtronov nam določi eno točko v fononskem spektru. Če hočemo torej določiti le fononski spekter, nam zadostujejo že ohranitveni zakoni. Vse zgornje izpeljave nam dodatno povejo le višine vrhov, medtem ko so lege določne z ohranitvijo energije in gibalne količine. Poglejmo si to še iz drugačne perspektive.

Predpostavimo, da je v sipanju udeležen le en fonon z energijo  $\hbar\omega_s(\mathbf{k})$ , torej iz fononske veje  $s$  in z valovnim vektorjem  $\mathbf{k}$ . Potem nam ohranitev energije da

$$\frac{\hbar^2}{2m_n}(\mathbf{k}_f^2 - \mathbf{k}_i^2) = \hbar\omega = \hbar\omega_s(\mathbf{k}). \quad (36)$$

To je isti pogoj, kot so nam ga dale delta funkcije v koherentni sipalni funkciji (33). Če bi bila tarča translacijsko invariantna, bi se tudi gibalna količina ohranila. Ker pa je kristal invarianten le za *diskreten* premik za Bravaisov vektor  $\mathbf{R}$ , imamo za ohranitev gibalne količine šibkejši pogoj. Ohrani se le aditivno do vektorja recipročne mreže

$$\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i = \mathbf{q} = \mathbf{k} + \mathbf{K}. \quad (37)$$



Slika 1: Grafično reševanje enačbe (38) v eni dimenziji.

Ta izraz je analogen vsoti Kronekerjevih delt. Pri obeh ohranitvenih zakonih smo predpostavili, da pride do absorpcije fonona. Pri tvorbi fonona spremenimo le predznak pred frekvenco in valovnim vektorjem fonona. Ta dva zakona nam data 4 enačbe za naših 6 neznank (vektorja  $\mathbf{k}_f$  in  $\mathbf{k}$ ). Da bo sistem rešljiv, potrebujemo še dva pogoja. Ta dobimo z geometrijo eksperimenta. Ponavadi merimo število nevtronov pri neki določeni orientaciji vektorja  $\mathbf{k}_f$  v prostoru, kar nam da ravno še dva dodatna pogoja za vektor  $\mathbf{k}_f$ . Imamo torej 6 enačb za 6 neznank, kar nam da končno število rešitev, oziroma drugače, pri dani smeri v prostoru imamo vrhove (veliko sipanih nevtronov) le pri diskretnih energijah. Valovne vektorje  $\mathbf{k}_f$  pri katerih imamo za dan  $\mathbf{k}_i$  rešitve dobimo preprosto kot rešitve enačbe

$$(\mathbf{k} + \mathbf{k}_i)^2 - \mathbf{k}_i^2 = \frac{2m_n}{\hbar} \omega_s(\mathbf{k}). \quad (38)$$

Leva stran je premaknjen paraboloid, na desni pa imamo fononski spekter. Iščemo torej presečišča premaknjenega paraboloida z  $\omega_s(\mathbf{k})$ . Ker je odvod paraboloida v izhodišču enak 0, fononski spekter (akustične veje) pa štarta iz izhodišča z neničelnim naklonom (ki je enak hitrosti), obstaja vsaj eno presečišče, saj je fononski spekter navzgor omejen, paraboloid pa ne. Ponavadi obstaja več presečišč, kot je primer na sliki (1). Hitro tudi vidimo, kako je z rešitvami pri višjih fononskih procesih, to je ko je pri sipanju udeleženih več fononov. Če imamo  $n$ -fononski proces, imamo skupaj  $3(n + 1)$  neznank, medtem ko je pogojev še vedno samo 6. Za  $n > 1$  imamo torej kontinuum rešitev. Pri dani orientiranosti  $\mathbf{k}_f$  v prostoru, nam dajo višji fononski procesi *vezno* ozadje. Tako je pri eksperimentu ponavadi zaželeno, da je višjih fononskih sipanj čim manj, tako da vrhovi eno-fononskih sipanj jasno izstopajo iz ozadja. Za konec obravnave harmoničnega kristala si pogledjmo še nekoherentni prispevek k sipanju.

Nekoherentni diferencialni sipalni presek za eno-fononsko sipanje na harmoničnem kristalu dobimo na podoben način kot koherentni presek. V izrazu za nekoherentni presek (18) seštejemo korelacijske funkcije le med istimi atomi, medtem ko smo pri koherentnem sešteli tudi korelacijske

funkcije med atomi na različnih mestih v Bravaisovi mreži. Za sipalno funkcijo dobimo

$$S(\mathbf{q}, \omega)_{\text{necoh.}} = \sum_{\mathbf{d}} \frac{\hbar}{2M_{\mathbf{d}}} \overline{|b_{\mathbf{d}} - \bar{b}_{\mathbf{d}}|^2} \exp(-2W_{\mathbf{d}}) \sum_{\mathbf{k}, s} |\mathbf{q} \cdot \boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{d}, s}(\mathbf{k})|^2 \frac{1}{\omega_s(\mathbf{k})} \cdot (\{n_s(\mathbf{k}) + 1\} \delta(\omega + \omega_s(\mathbf{k})) + n_s(\mathbf{k}) \delta(\omega - \omega_s(\mathbf{k}))). \quad (39)$$

Debye-Wallerjev faktor je seveda enak kot za koherentno sipanje (27), saj velja slednji izraz za poljubno sipanje na *harmoničnem kristalu*. Nekoherentna sipalna funkcije (39) se od koherentne (33) razlikuje predvsem na dva načina. Nima predfaktorja  $N$ , kar pomeni da je sipalni presek sorazmeren z  $N$  in ne z  $N^2$ , kot za koherentno sipanje. Druga razlika pa je, da nimamo pogoja za ohranitev valovnega vektorja (Kronekerjevih delt v (33)). Če odmislimo produkt  $\mathbf{q}$  in polarizacijskega vektorje, sipalna funkcija  $S(\mathbf{q}, \omega)$  za nekoherentno sipanje ni odvisna od  $\mathbf{q}$ . To pa pomeni, da z nekoherentnim sipanjem ne moremo določiti disperzijske odvisnosti  $\omega_s(\mathbf{k})$ . Vsota po  $\mathbf{k}$  v izrazu (39) je vsota po zasedbenih številih, prispevek pa imamo le za stanja pri frekvenci  $\omega$ . Torej je ta vsota v sorodu z gostoto fononskih stanj pri frekvenci  $\omega$ . Z nekoherentnim sipanjem lahko merimo le *gostoto* fononskih stanj.

### 3.1.4 Anharmonični kristal

Dejanski kristali so le približno harmonični. Potrebno je torej povedati, kaj se spremeni v sipalnih presekih, ki smo jih izpeljali v prejšnjem poglavju. Ker je fizikalno pomemben predvsem presek za koherentno eno-fononsko sipanje, se bomo omejili na spremembe tega preseka. Prva, očitna posledica je, da fononi (lastne vzbuditve v harmoničnem približku) niso več lastna stanja. Če je anharmoniški del dovolj majhen, je še vedno smiselno govoriti o fononih, le da bodo ti imeli sedaj nek končni življenski čas. V spektru se to pokaže tako, da se spektralna črta, ki je bila prej neskončno ostra, razširi. Druga posledica anharmoničnosti je majhen premik lastnih frekvenc (spomnimo se na anharmonični oscilator). Če anharmonske člene v potencialu zapišemo s kreacijskimi in anihilacijskimi operatorji vidimo, da nam člen oblike  $x^n$  sklopi med seboj  $n$ -fononov. Npr. četrta potenca omogoči medsebojna sipanja štirih fononov. Vpliv anharmonskega člena se s temperaturo večja. Pri nizki temperaturi so amplitude nihanj majhne, kar pomeni da so atomi vedno v harmonskem območju potenciala.

## Literatura

- [1] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Solid State Physics*, (Saunders College Publishing, 1976)
- [2] S.W. Lovesey, T. Springer (ed.), *Dynamics of Solids and Liquids by Neutron Scattering*, (Springer-Verlag, 1977)
- [3] *Focus Issue : Neutrons*, Physics Today, Januar 1985
- [4] P. Sokol, *Compton neutron scattering*, Physics World, Marec 1994, str. 25
- [5] N.D. Mermin, *A Short Simple Evaluation of Expressions of the Debye-Waller Form*, J.Math.Phys. **7**, 1038 (1966)