

КОРРЕЛЯЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ В МНОГОКРАТНОМ МАЛОУГЛОВОМ РАССЕЯНИИ НЕЙТРОНОВ

Ф.С.Джепаров¹⁾, Д.В.Львов¹⁾

Институт теоретической и экспериментальной физики
117259 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 июля 2000 г.

Рассмотрена зависимость спектров многократного малоуглового рассеяния нейтронов от доли объема, занятой рассеивающими зёрнами. На основе метода концентрационного разложения развита теория рассеяния в эйкональном приближении. Главный член разложения воспроизводит стандартную теорию малой плотности (Мольер). Проанализированы некоторые свойства первого поправочного члена и показано, что с ростом плотности угловое распределение сужается в качественном согласии с экспериментальными данными.

PACS: 61.12.Bt

1. Многие из свойств веществ, находящихся в конденсированном состоянии, обусловлены неоднородностями состава, имеющими надатомные размеры $a \sim (10^2 - 10^4) \text{ \AA}$: выделением фаз, присутствием в объеме пор (пустот), зерен, скоплений дислокаций и т.д. Для получения соответствующей информации широко используется метод малоуглового рассеяния нейтронов (МУРН), поскольку характерный угол однократного рассеяния $\Delta\alpha = \Delta p/p$ определяется очевидным соотношением $\Delta p \sim 1/a$, и для тепловых нейтронов существенны углы рассеяния $\Delta\alpha \sim (10^{-3} - 10^{-5})$ рад.

Естественное развитие экспериментальных исследований многократного малоуглового рассеяния нейтронов (ММУРН) ведет к изучению плотных образцов, в которых длина свободного пробега нейтронов $l_c = 1/c\sigma_t$ соизмерима с размером a элементарного рассеивателя (зерна), имеющего полное сечение σ_t . Здесь c – число зерен в единице объема (их плотность или концентрация) [1, 2]. Современная теория ММУРН претендует на полное описание при $l_c/a \gg 1$ [3, 4], а при увеличении плотности (и сближении l_c с a) экспериментально обнаружены заметные отклонения от ее предсказаний [1, 2].

Данная работа направлена на построение обобщения теории ММУРН для немалых плотностей на основе техники концентрационных разложений [5]. Мы рассмотрели общие контуры теории и показали, что главная по плотности поправка имеет порядок $b = \frac{4}{3}\pi c a^3$, и поэтому может быть не малой даже если $l_c \gg a$. Наличие в теории такого параметра очевидно уже из того, что при немалых $c a^3$ зерна упорядочиваются в пространстве, и это полностью изменяет спектр рассеяния как в квантовом, так и в классическом случае.

2. Представим нейтронооптический потенциал среды, в которой распространяются нейтроны, как

$$U(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{x}} n_{\mathbf{x}} U_0(\mathbf{r} - \mathbf{x}, \alpha_{\mathbf{x}}), \quad (1)$$

¹⁾ e-mail: dzheparov@vitep5.itep.ru, lvov@vitep5.itep.ru

где $U_0(\mathbf{r}, \alpha)$ – потенциал зерна с “центром” в $\mathbf{r} = \mathbf{0}$, $\alpha_{\mathbf{x}}$ – совокупность “внутренних” параметров, дающих достаточно полное описание потенциала (далее мы будем опускать индекс \mathbf{x} у $\alpha_{\mathbf{x}}$), а $n_{\mathbf{x}}$ – число заполнения узла \mathbf{x} [5]. Здесь и далее предполагается, что центры зерен могут располагаться в узлах некоторой решетки, элементарная ячейка которой имеет объем Ω , а среднее значение $\langle n_{\mathbf{x}} \rangle = f$. В пределе $f \rightarrow 0$, $\Omega \rightarrow 0$, $f/\Omega = c = \text{const}$ получается случайное распределение зерен в непрерывном пространстве, а наличию корреляций в расположении зерен соответствует соотношение $\Omega^{-2} \langle n_{\mathbf{x}} n_{\mathbf{y}} \rangle = C_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \neq c^2$ (где $C_2(\mathbf{x}, \mathbf{y})$ – парная функция распределения) и его очевидные обобщения для высших функций распределения.

В приближении эйконала [6], которое обычно вполне достаточно для практических целей, амплитуда рассеяния

$$f(\mathbf{q}) = \frac{p_0}{2\pi i} \int d^2\rho [S(\rho) - 1] \exp(-i\mathbf{q}\rho), \quad (2)$$

$$S(\rho) = \exp\left(-i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dz}{v} U(\mathbf{r})\right), \quad \mathbf{r} = (\rho, z).$$

Здесь начальный импульс нейтрона $\mathbf{p}_0 = (0, 0, p_0)$, v – его скорость, ρ – прицельный параметр, \mathbf{q} – импульс рассеяния, $\mathbf{q}\mathbf{p}_0 = 0$ и $q \ll p_0$.

Нормированное угловое распределение нейтронов по импульсу

$$D(\mathbf{q}) = \Sigma(\mathbf{q})/\Sigma_0, \quad \Sigma(\mathbf{q}) = |f(\mathbf{q})|^2, \quad \Sigma_0 = \int d^2q \Sigma(\mathbf{q}). \quad (3)$$

Как обычно, здесь предполагается, что $\Sigma(\mathbf{q})$ сосредоточено при малых q и поэтому пределы интегралов в (3) и далее считаются бесконечными. Для теоретического анализа удобно ввести фурье-образ

$$D(\xi) = \Sigma(\xi)/\Sigma_0, \quad \Sigma(\xi) = \int d^2q \exp(-i\mathbf{q}\xi) \Sigma(\mathbf{q}), \quad \Sigma_0 = \Sigma(\xi = \mathbf{0}). \quad (4)$$

Очевидно, что

$$\begin{aligned} \Sigma(\xi) &= p_0^2 \int d^2\rho [S(\rho - \xi/2) - 1][S^+(\rho + \xi/2) - 1] = \\ &= p_0^2 \int d^2\rho [S(\rho - \xi/2)S^+(\rho + \xi/2) - 1] + \Sigma_0. \end{aligned} \quad (5)$$

Далее мы будем предполагать размеры образца столь большими, что $\Sigma(\mathbf{q})$ является самоусредняющейся величиной относительно случайного распределения зерен, то есть $\Sigma(\mathbf{q}) = \langle \Sigma(\mathbf{q}) \rangle$, и вычислим

$$\Delta\Sigma(\xi) = \langle \Sigma(\xi) - \Sigma_0 \rangle. \quad (6)$$

Используя (1),(2),(6) и полагая $\mathbf{r} = (\rho, z)$ получаем

$$\Delta\Sigma(\xi) = p_0^2 \int d^2\rho \left[\left\langle \exp\left(\sum_{\mathbf{x}} n_{\mathbf{x}} R_{\mathbf{x}}(\rho, \xi, \alpha)\right) \right\rangle - 1 \right], \quad (7)$$

$$R_{\mathbf{x}}(\rho, \xi, \alpha) = -i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dz}{v} [U_0(\mathbf{r} - \mathbf{x} - \xi/2, \alpha) - U_0(\mathbf{r} - \mathbf{x} + \xi/2, \alpha)]. \quad (8)$$

В пренебрежении граничными эффектами

$$\Delta \Sigma(\xi) = p_0^2 S_s \left[\langle \exp \left(\sum_{\mathbf{x}} n_{\mathbf{x}} R_{\mathbf{x}}(\mathbf{0}, \xi, \alpha) \right) \rangle - 1 \right]. \quad (9)$$

Здесь S_s – площадь поперечного сечения образца.

Отметим, что в классическом пределе

$$R_{\mathbf{x}}(\rho, \xi, \alpha) \rightarrow R_{\mathbf{x}}^{cl}(\rho, \xi, \alpha) = i\xi \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dz}{v} \frac{\partial U_0(\mathbf{r} - \mathbf{x}, \alpha)}{\partial \mathbf{r}}.$$

3. Рассмотрим сначала случайное некоррелированное распределение зерен. В этом случае возможен точный расчет на основе соотношения

$$\langle \exp \left(\sum_{\mathbf{x}} n_{\mathbf{x}} R_{\mathbf{x}} \right) \rangle = \exp \left[c \int_V d^3x \langle e^{R_{\mathbf{x}}} - 1 \rangle_{\alpha} \right], \quad (10)$$

справедливого в континуальном пределе [5] для функции $R_{\mathbf{x}}$ достаточно общего вида. Здесь V – объем, занимаемый образцом, а $\langle \dots \rangle_{\alpha}$ означает усреднение по распределению внутренних параметров, которые предполагаются независимыми для разных зерен.

Производя усреднение в (9) с учетом (10), получаем

$$\Delta \Sigma(\xi) / p_0^2 S_s + 1 = \exp \left[cl \int d^2 \rho \langle \exp (R_{\rho}(\mathbf{0}, \xi, \alpha)) - 1 \rangle_{\alpha} \right] = \exp \left[-cl (\sigma_0 - \sigma(\xi)) / p_0^2 \right], \quad (11)$$

где $l \gg a$ – толщина образца, а $\sigma(\xi)$ и $\sigma_0 = \sigma(\xi = 0) = p_0^2 \sigma_t$ аналогичны $\langle \Sigma(\xi) \rangle$ и $\langle \Sigma_0 \rangle$ для случая однократного рассеяния. При этом, как и в (5), фурье-образ дифференциального сечения однократного рассеяния

$$\sigma(\xi) = \int d^2 q \exp(-iq\xi) \sigma(\mathbf{q}) = p_0^2 \langle \int d^2 \rho [S_0(\rho - \xi/2) S_0^+(\rho + \xi/2) - 1] \rangle_{\alpha} + \sigma_0.$$

Здесь

$$S_0(\rho) \equiv S_0(\rho, \alpha) = \exp \left(-i \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dz}{v} U_0(\mathbf{r}, \alpha) \right).$$

Таким образом, при некоррелированном расположении зерен

$$D(\xi) = \frac{p_0^2 S_s \exp(-cl(\sigma_0 - \sigma(\xi)) / p_0^2)}{\Sigma_0} + \frac{\Sigma_0 - p_0^2 S_s}{\Sigma_0}.$$

Для анализа спектра рассеянных нейтронов достаточно использовать

$$D(\xi) = D_0(\xi) = \exp[-cl(\sigma_0 - \sigma(\xi)) / p_0^2]. \quad (12)$$

Две приведенные выше формулы для $D(\xi)$ отличаются только долей нейтронов, не испытавших рассеяния. Формула (12) совпадает со стандартным результатом теории Мольера, применимой в пределе малой плотности зерен.

4. При большой плотности зерен многочастичная функция распределения не факторизуется в произведение одночастичных и прямой переход от (9) к (11) не возможен. Тем не менее, согласно общей теории кумулянтных разложений [7], мы должны ожидать, что если корреляции в расположении зерен исчезают с ростом расстояния, то

$$D(\xi) = \exp(-l \cdot M(\xi, l)),$$

где $M(\xi, l)$ имеет конечный предел при $l \rightarrow \infty$. В этом случае естественно разложить $D(\xi)$ в ряд по числам заполнения по правилу [5]

$$\begin{aligned} \exp\left(\sum_{\mathbf{x}} n_{\mathbf{x}} R_{\mathbf{x}}\right) &= \prod_{\mathbf{x}} [1 + n_{\mathbf{x}}(e^{R_{\mathbf{x}}} - 1)] = \\ &= 1 + \sum_{\mathbf{x}} n_{\mathbf{x}}(e^{R_{\mathbf{x}}} - 1) + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{x} \neq \mathbf{y}} n_{\mathbf{x}} n_{\mathbf{y}} (e^{R_{\mathbf{x}}} - 1)(e^{R_{\mathbf{y}}} - 1) + \dots \end{aligned} \quad (13)$$

Вводя $Q_{\mathbf{x}}(\xi, \alpha) = \exp(R_{\mathbf{x}}(0, \xi, \alpha)) - 1$ и усредняя (13) почленно по числам заполнения и по распределению α , получаем, что в континуальном пределе

$$\begin{aligned} \langle \exp\left(\sum_{\mathbf{x}} n_{\mathbf{x}} R_{\mathbf{x}}\right) \rangle &= \exp(B), \\ B &= c \int d^3 x \langle Q_{\mathbf{x}} \rangle_{\alpha} + \frac{c^2}{2} \int d^3 x d^3 y \kappa(\mathbf{x}, \mathbf{y}) \langle Q_{\mathbf{x}} Q_{\mathbf{y}} \rangle_{\alpha} + \\ &+ \frac{c^2}{2} \int d^3 x d^3 y (\langle Q_{\mathbf{x}} Q_{\mathbf{y}} \rangle_{\alpha} - \langle Q_{\mathbf{x}} \rangle_{\alpha} \langle Q_{\mathbf{y}} \rangle_{\alpha}) + O(c^3). \end{aligned} \quad (14)$$

Здесь

$$C_2(\mathbf{x}, \mathbf{y}) = c^2 (\kappa(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + 1). \quad (15)$$

Очевидно, что в приложении этих соотношений к $D(\xi)$ первый (линейный по c) член из B воспроизведет $D_0(\xi)$.

5. Рассмотрим результаты, к которым приводят формулы (11) и (14) в случае, когда зерна представляют собой тождественные сферы с радиусом a . Полагая

$$U_0(\mathbf{r}, \alpha) = U_0 \vartheta(r < a), \quad (16)$$

где $\vartheta(z) = 1$, если условие z выполнено и $\vartheta(x) = 0$ в противном случае, и учитывая отсутствие внутренней переменной α , получаем

$$\begin{aligned} D(\xi) &= D(\xi_1, \xi_2) = D_0(\xi) \exp\left[\frac{c^2 l}{2} (K(\xi) + O(c))\right], \\ K(\xi) &= \int d^2 x \int d^2 y \bar{\kappa}(|\mathbf{x} - \mathbf{y}|) Q_{\mathbf{x}}(\xi) Q_{\mathbf{y}}(\xi), \quad \bar{\kappa}(x) = \int_{-\infty}^{\infty} dz \kappa(\sqrt{x^2 + z^2}), \\ Q_{\mathbf{x}}(\xi) &= e^{-i\phi(\mathbf{x} - \xi/2) + i\phi(\mathbf{x} + \xi/2)} - 1, \quad \phi(x) = \frac{2U_0}{v} \sqrt{a^2 - x^2} \vartheta(x < a). \end{aligned} \quad (17)$$

Заметим, что при малых значениях борновского параметра $\nu = U_0 a/v$ в выражении (17) главный и первый поправочный член порядка ν^2 , а следующие члены имеют более высокий порядок по ν . Следовательно, при малых ν мы имеем полное решение проблемы ММУРН для образца с конечной эффективной толщиной $l_e = l/l_c \propto \nu^2 l$.

Подробный анализ парной корреляционной функции в модели твердых сфер был проделан при изучении свойств простых жидкостей [8]. Мы будем исходить из обобщенной модели Перкуса – Йевики [9], дающей прекрасное согласие с численными расчетами, выполненными по методу молекулярной динамики. В работе [9] функция $\kappa(r)$ рассчитана для удельного объема зерен $b = 0.1 \div 0.5$. Данная функция имеет вид $\kappa(x) = -\vartheta(x < 2a) + \vartheta(2a < x)f(x)$. При этом первый член отражает непроницаемость сфер, а второй отвечает существованию эффективного притяжения, хорошо известного в теории парных корреляционных функций [10]. Оно имеет весьма простую статистическую природу. Действительно, вводя величины

$$\Delta n(\mathbf{k}) = n(\mathbf{k}) - \langle n(\mathbf{k}) \rangle, \quad n(\mathbf{k}) = \sum_{\mathbf{x}} \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{x})n_{\mathbf{x}},$$

и используя очевидное соотношение $\langle |\Delta n(\mathbf{k})|^2 \rangle \geq 0$, получаем, что величина $\kappa(\mathbf{k}) = \int d^3x \exp(-i\mathbf{k}\mathbf{x})\kappa(\mathbf{x})$ должна удовлетворять условию

$$1 + c\kappa(\mathbf{k}) \geq 0. \quad (18)$$

При учете только непроницаемости сфер, то есть при $f(x) = 0$, условие (18) нарушается уже при $(4\pi/3)c(2a)^3 > 1$, что соответствует $b > 1/8$. Таким образом, условие (18) налагает весьма сильное ограничение на допустимые модели корреляций $\kappa(x)$ при немалых b .

Угловое распределение в экспериментах с использованием двухкристалльных спектрометров дается однократным преобразованием Фурье [2]:

$$I(q) = \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} d\xi \cos(q\xi)D(\xi, 0) = I_s \delta(q) + I_r(q), \quad (19)$$

где $I_r(q)$ – гладкая функция и доля нерассеянных нейтронов,

$$I_s = \exp\left(-\frac{l}{l_c}h_{\infty}\right), \quad h_{\infty} = 1 - cK(\xi \rightarrow \infty)/(2\sigma_t). \quad (20)$$

Фурье-образ интенсивности $D(\xi, 0)$ удобно представить в виде

$$D(\xi, 0) = \exp\left(-\frac{l}{l_c}h(\xi)\right). \quad (21)$$

Величина $h(\xi)$ для различной концентрации рассеивателей представлена на рис.1. Полученные функции содержат осцилляции, являющиеся следствием того, что парная корреляционная функция также содержит осцилляции. Кроме того, видна сильная зависимость от концентрации величины $h_{\infty} = h(\xi \rightarrow \infty)$, которая определяет интенсивность I_s , не испытавших рассеяния нейтронов, а именно, h_{∞} изменяется в пределах от $h_{\infty}(b = 0) = 1$ до $h_{\infty}(b = 0.5) \approx 0.35$. Угловое распределение нейтронов, определяемое из (17),(19), представлено на рис.2 для эффективных толщин

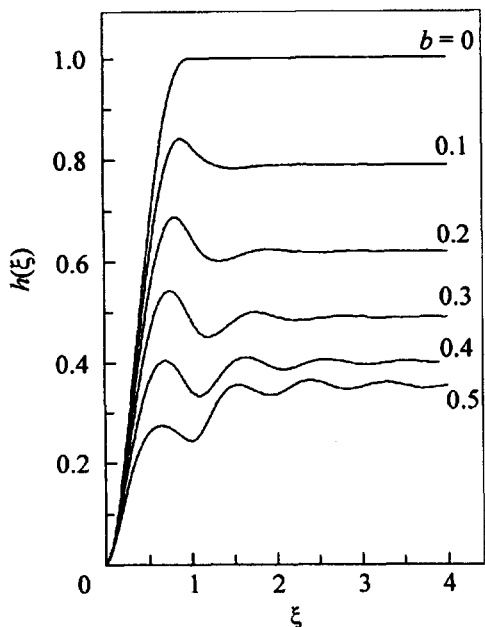


Рис.1. Величина $h(\xi)$, определяемая формулой (21), при различных значениях занятого зернами удельного объема $b = (4\pi/3)ca^3$, где c – концентрация зерен

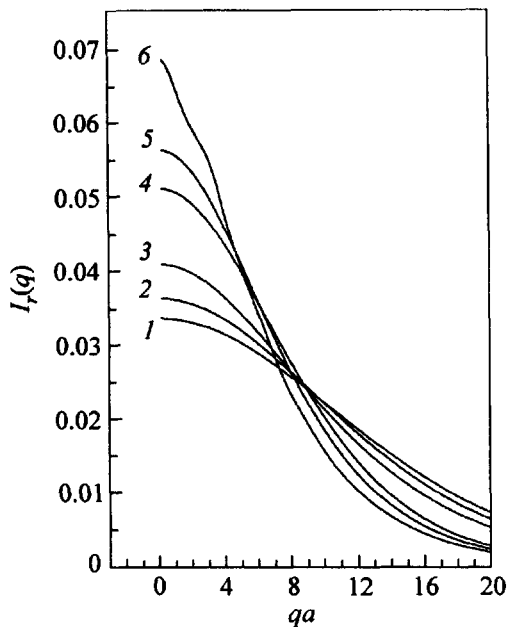


Рис.2. Интенсивность рассеянных нейтронов $I_r(q)$ для образца с борновским параметром $\nu = 0.2$ и эффективной толщиной $l_e = l/l_c$ при различных концентрациях зерен. 1 – $l_e = 40$, $b = 0$; 2 – $l_e = 40$, $b = 0.3$; 3 – $l_e = 40$, $b = 0.5$; 4 – $l_e = 20$, $b = 0$; 5 – $l_e = 20$, $b = 0.3$; 6 – $l_e = 20$, $b = 0.5$

$l_e = l/l_c = 20$ и $l_e = 40$, что соответствует эксперименту [1]. Видно, что с ростом концентрации при фиксированном l/l_c угловое распределение сужается. Подобное сужение наблюдалось экспериментально при ММУРН на порошках Al [1]. Благодарим Г.Глэтли, В.К.Игнатовича и авторов работы [1] за полезные обсуждения. Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 00-02-17837; 00-15-96656).

1. Ю.Г.Абов, Ю.И.Смирнов, Д.С.Денисов и др., Сб. докл. Нац. конф. РСНЭ, т.2, Дубна, 1997, стр.115.
2. Ю.Г.Абов, Д.С.Денисов, Ф.С.Джепаров и др., ЖЭТФ 114, 2194 (1998).
3. С.В.Малеев, В.П.Топерверг, ЖЭТФ 78, 315 (1980).
4. С.Г.Богданов, А.З.Меньшиков, ЖЭТФ 117, 122 (2000).
5. Ф.С.Джепаров, В.С.Смелов, В.Е.Шестопап, Письма в ЖЭТФ 32, 51 (1980).
6. Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц, Квантовая механика, М.: Наука, 1989.
7. R.Kubo, J. Phys. Soc. Jpn. 17, 1100 (1962).
8. Г.Н.Саркисов, УФН 169, 625 (1999).
9. R.O.Watts and D.Henderson, Mol. Phys. 16, 217 (1969).
10. Р.Валеску, Равновесная и неравновесная статистическая механика, М.: Мир, 1978.