

Misure di scattering anelastico

Cosa si misura?

In esperimenti di scattering anelastico l'intensità viene registrata (generalmente) al variare di θ e E , ovvero i neutroni diffusi dal campione sono discriminati anche in base all'energia scambiata col sistema in studio.

Misurare l'intensità anche al variare dell'energia scambiata $E = E_0 - E_1$

RICHIEDE

la definizione *a priori* dell'energia dei neutroni incidenti (E_0), e la misura/scan dell'energia finale (E_1)

OPPURE

la definizione *a priori* dell'energia dei neutroni diffusi (E_1), e la variazione/scan dell'energia incidente (E_0)

2 classi distinte di spettrometri

(alcuni possono operare in entrambi i modi)

Geometria diretta

Geometria inversa

Scattering anelastico di neutroni

Qualche altra considerazione preliminare...

Nello scambio di energia con una sonda, un campione può “accettare” o “cedere” solo quanto si **accorda** con i suoi livelli energetici quantizzati o con quanti di vibrazione (e.g. fononi nei solidi, “pseudo-fononi” nei liquidi) o con altre forme quantizzate di possibili eccitazioni (e.g. rotoni nei superfluidi) governate dalla struttura, simmetria, proprietà e composizione specifica del sistema.

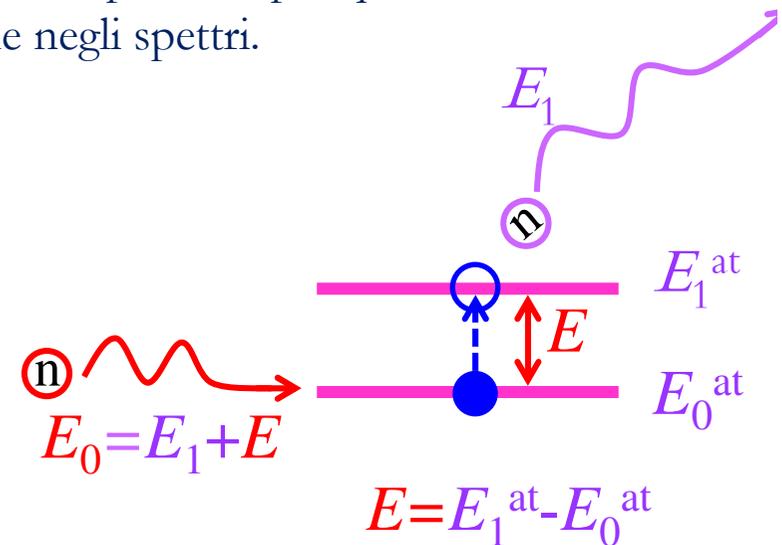
La risposta ad una sonda permette di risalire a queste proprietà fondamentali del sistema di interesse grazie ad un mero fenomeno di **risonanza**: quando la “sollecitazione” (scambio di energia con la sonda) si accorda con le energie delle eccitazioni possibili per quel dato sistema, la risposta è “massima” e si osservano strutture anelastiche negli spettri.

Una sonda con energia incidente E_0 molto maggiore degli scambi di energia (E) che si vogliono misurare richiede strumenti con una risoluzione in energia ΔE estremamente buona. Esempio: Raggi X

$$E_0 \sim 10 \text{ keV}, E \sim 10 \text{ meV} \Rightarrow \Delta E / E_0 \lesssim E / E_0 \sim 10^{-6}!!$$

I neutroni richiedono poteri risolutivi di gran lunga meno impegnativi da un punto di vista strumentale:

$$E_0 \sim 25 \text{ meV}, E \sim 10 \text{ meV} \Rightarrow \Delta E / E_0 \lesssim E / E_0 \sim 4 \cdot 10^{-1}!!$$



Scattering anelastico di neutroni: i fondamentali

Ma è possibile misurare qualsiasi scambio di energia e impulso?

La risposta è NO. Capiamo perché. Se si combinano le due leggi di conservazione si trova la relazione generale che lega Q e ω , attraverso l'angolo di scattering (considerato come parametro nelle varie curve mostrate sotto):

$$\omega_0 = \frac{\hbar k_0^2}{2m}$$

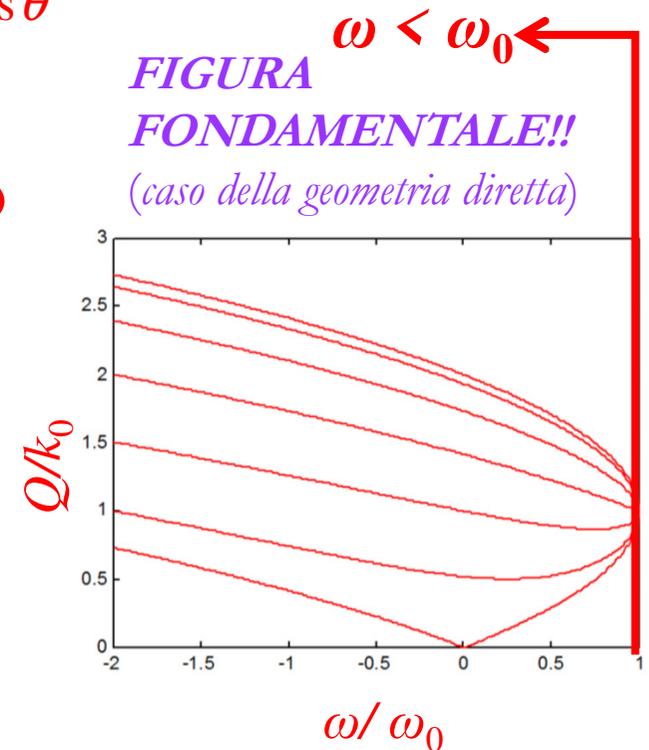
$$\frac{k_1}{k_0} = \sqrt{1 - \frac{\omega}{\omega_0}}$$

$$Q^2 = k_0^2 + k_1^2 - 2 k_0 k_1 \cos \theta$$

dalla conservazione dell'energia

dalla conservazione dell'impulso

$$\frac{Q}{k_0} = \sqrt{1 + \left(1 - \frac{\omega}{\omega_0}\right) - 2 \cos \theta \sqrt{1 - \frac{\omega}{\omega_0}}}$$



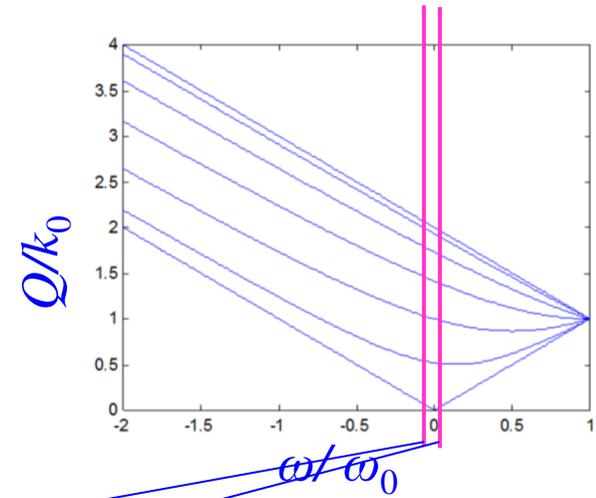
Una situazione simile vale, in unità ridotte, anche per i raggi X....

raggi X

$$\omega_0 = ck_0$$

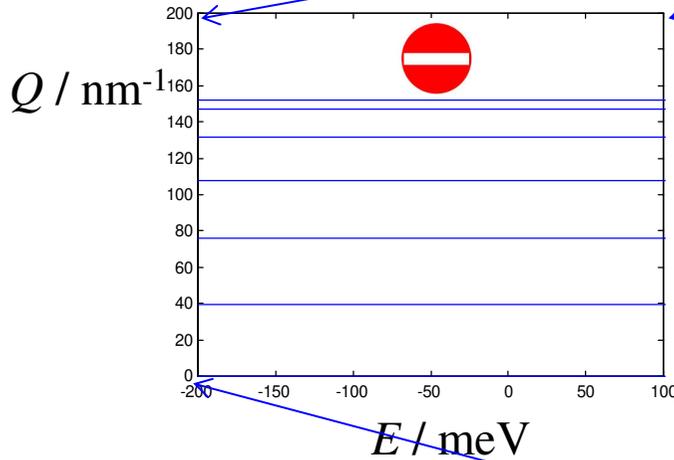
$$\frac{k_1}{k_0} = 1 - \frac{\omega}{\omega_0}$$

$$\frac{Q}{k_0} = \sqrt{1 + \left(1 - \frac{\omega}{\omega_0}\right)^2 - 2\cos\theta \left(1 - \frac{\omega}{\omega_0}\right)}$$



Ma in unità assolute la situazione è ben diversa fra le due sonde:

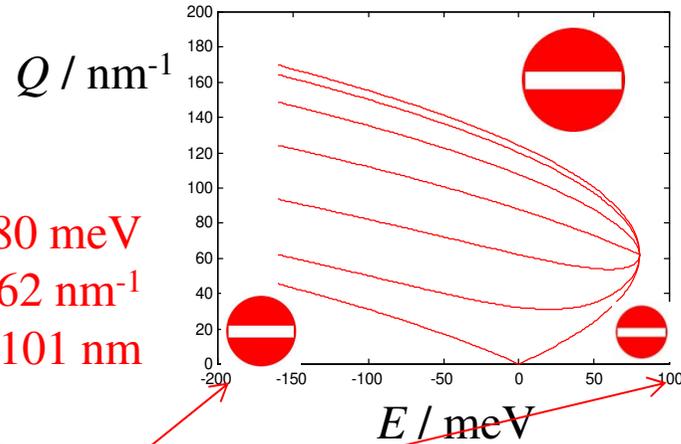
raggi X



$E_0 = 15 \text{ keV}$
 $k_0 = 76 \text{ nm}^{-1}$
 $\lambda_0 = 0.083 \text{ nm}$

$E_0 = 80 \text{ meV}$
 $k_0 = 62 \text{ nm}^{-1}$
 $\lambda_0 = 0.101 \text{ nm}$

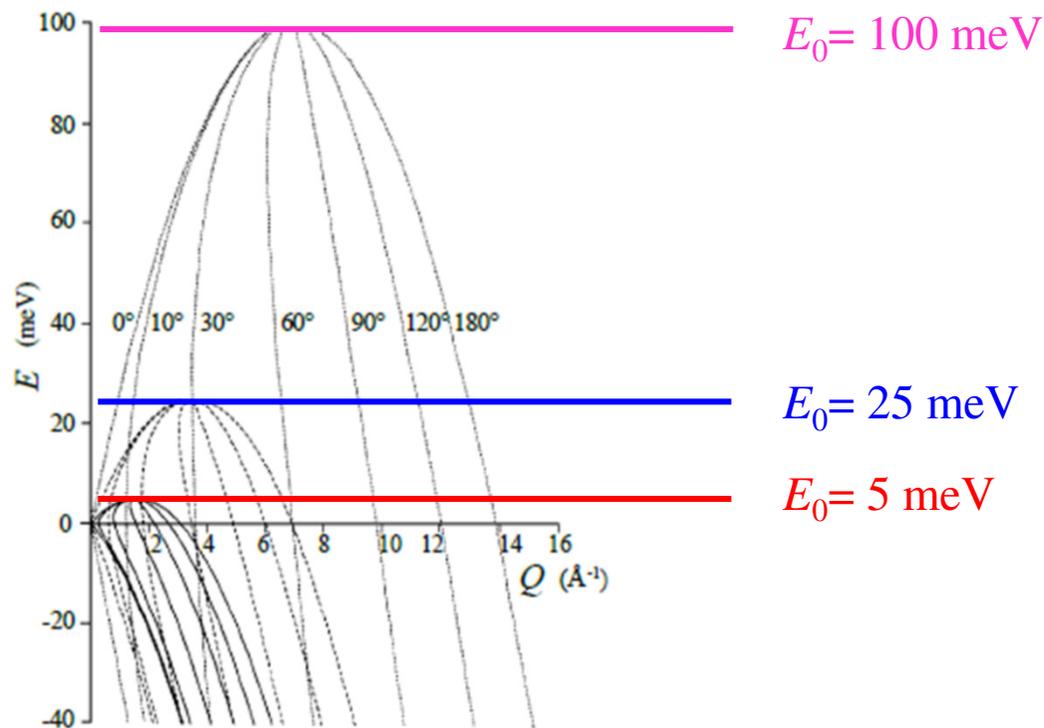
neutroni



STESSO
 range di E!!

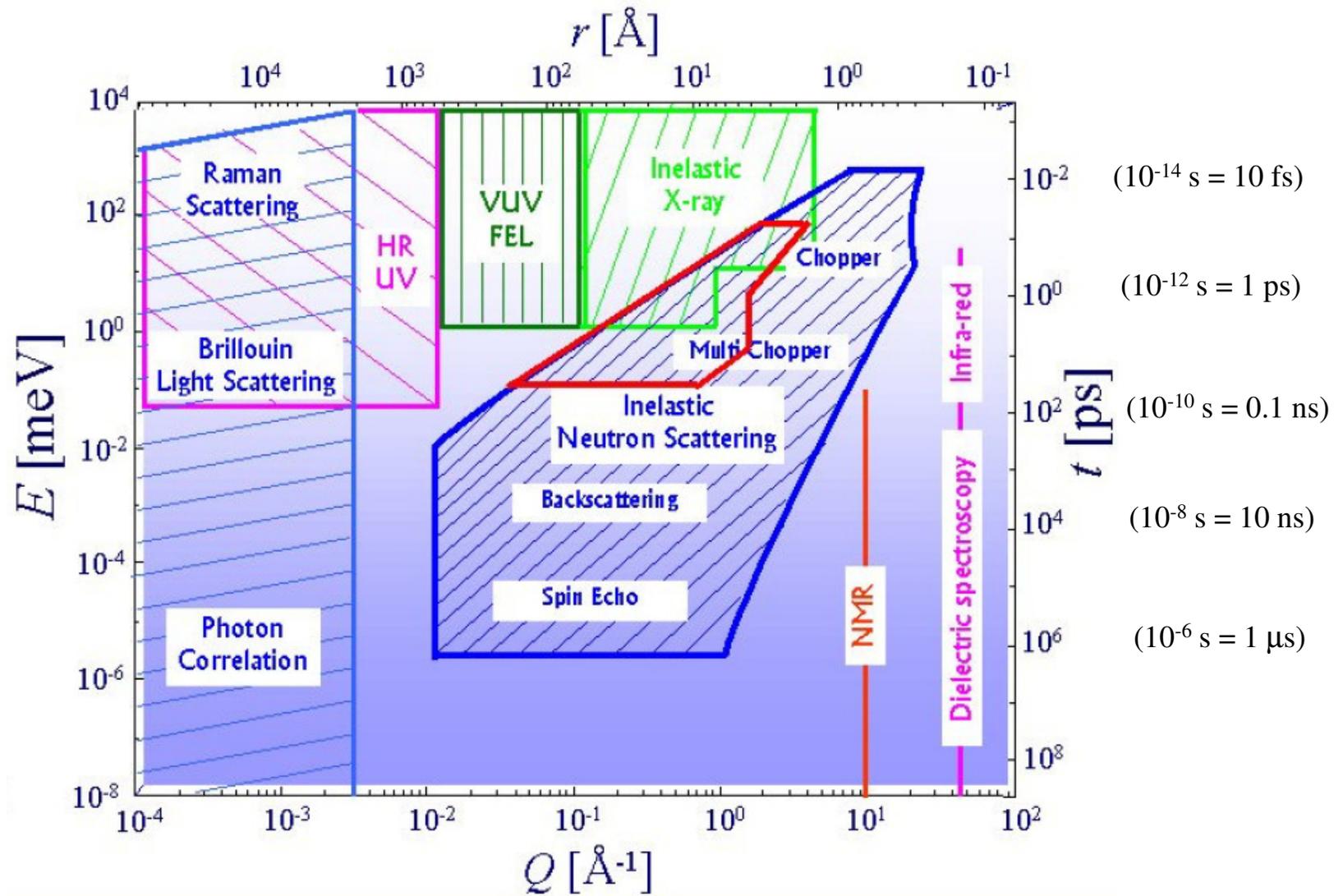
Scattering anelastico di neutroni: i fondamentali

Ma aumentando l'energia incidente....



Aumentando l'energia incidente si mappano zone sempre più ampie del piano cinematico (Q, E) , ma purtroppo “la coperta è corta”, infatti non può essere aumentata a piacere poiché ciò comporta un **peggioramento critico della risoluzione in energia** raggiungibile ed una riduzione netta della possibilità di osservare eccitazioni con energia e vita media (larghezza delle righe anelastiche) troppo piccole rispetto all'energia incidente.

Dynamical ranges and comparisons



Length and time scales in Neutron Scattering

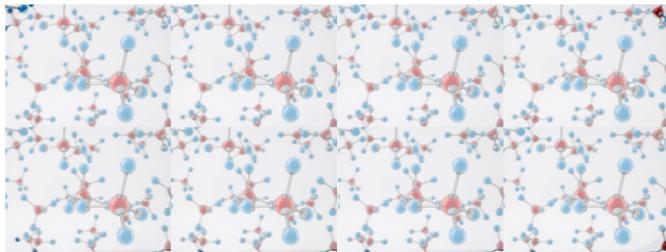
In neutron **spectroscopy** we talk about spatially probing a simple molecular system over



“Large” length scales = “small” Q when $0.01 < Q < 0.1 \text{ \AA}^{-1}$, roughly

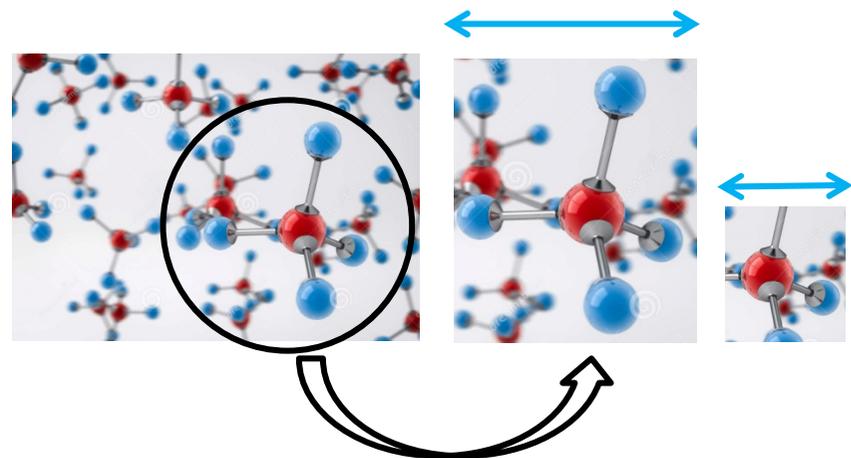
“Small” length scales = “high” Q when $60 < Q < 120 \text{ \AA}^{-1}$, roughly (DINS case)

“small” Q = “long” wavelength probing



“Distant view” of the system

“high” Q = “shorter and shorter” wavelength probing



“Closer view” of the system: a zoom inside the material

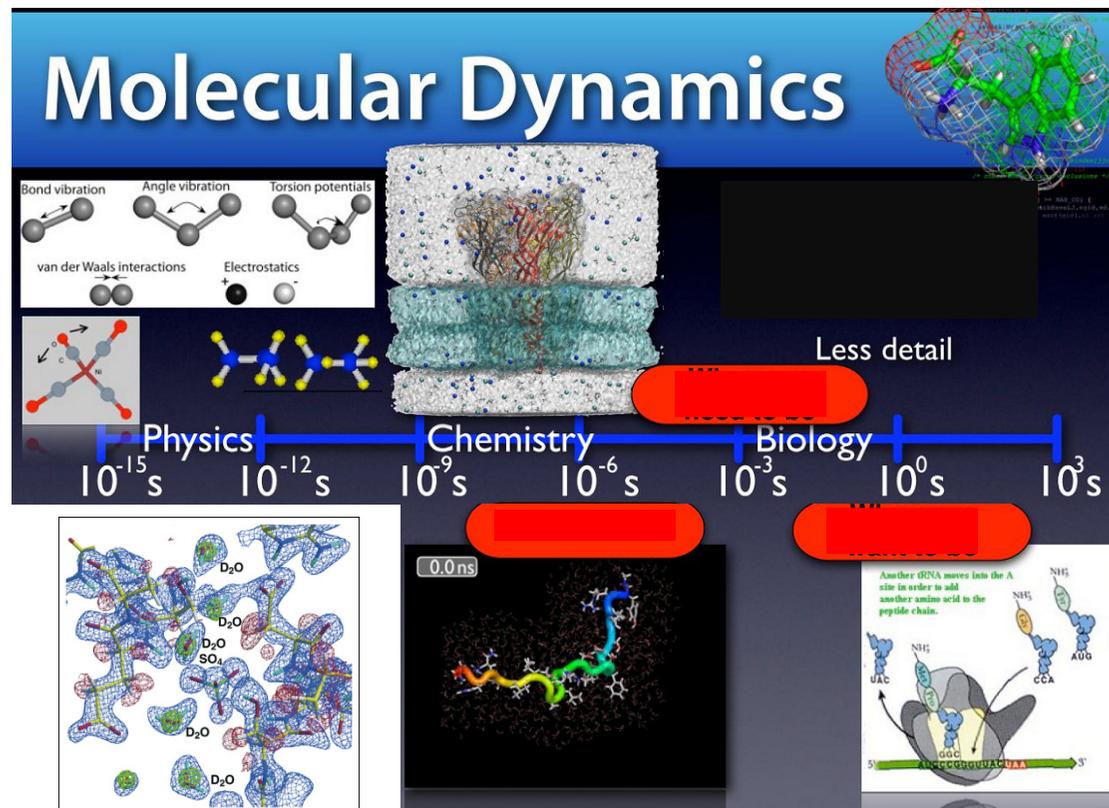
Length and time scales in Neutron Scattering

In neutron spectroscopy we talk about molecular motions and dynamics by distinguishing between:



“Fast” dynamics = “high” frequency \Rightarrow timescale of the dynamical process \sim ps range

“Slow” dynamics = “low” frequency \Rightarrow timescale of the dynamical process \sim ns range



Dynamics by Quasi and INelastic Neutron Scattering

“Fast” dynamics \Rightarrow (sub) ps range \Rightarrow rather energetic neutrons (thermal/hot)



Small *angle* \Rightarrow Brillouin spectroscopy (BRISP)

Wide *angle* \Rightarrow conventional INS (e.g. IN4, 3-axis spectrometers as IN1, IN8)

“Slow” dynamics \Rightarrow (>10 ps) \Rightarrow approaching the ns range \Rightarrow cold neutrons

High resolution



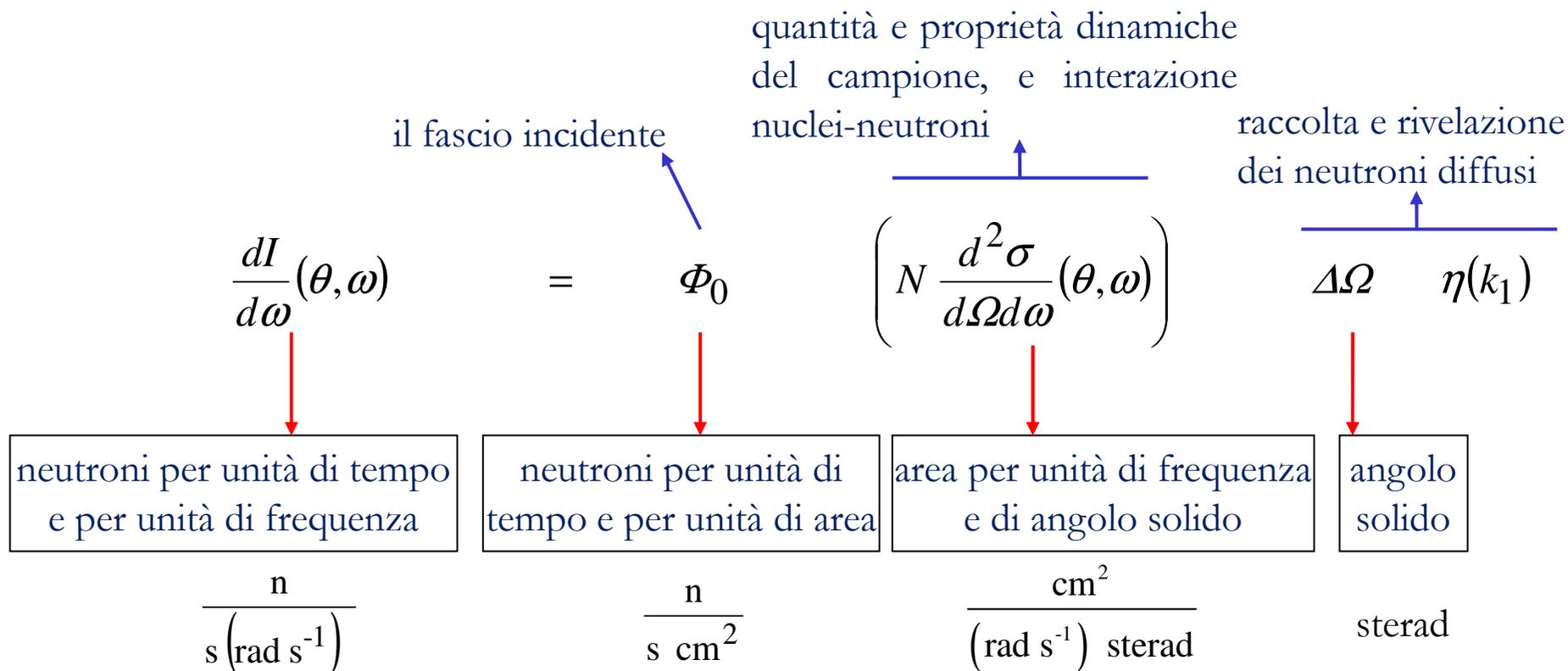
Backscattering spectrometers (e.g. IN16, IN13)

ToF cold neutron spectrometers (e.g. IN5)

Spin echo (high resolution measurements in the time domain)

Scattering anelastico di neutroni: i fondamentali

L'intensità raccolta



L'esperimento ideale

Sognando oltre....

... il vero esperimento ideale richiederebbe la combinazione di:

- uno strumento "perfetto"
- un campione "ideale"
- una relazione $I(\theta, \omega) \leftrightarrow S(Q, \omega)$ "diretta"

Alcune caratteristiche

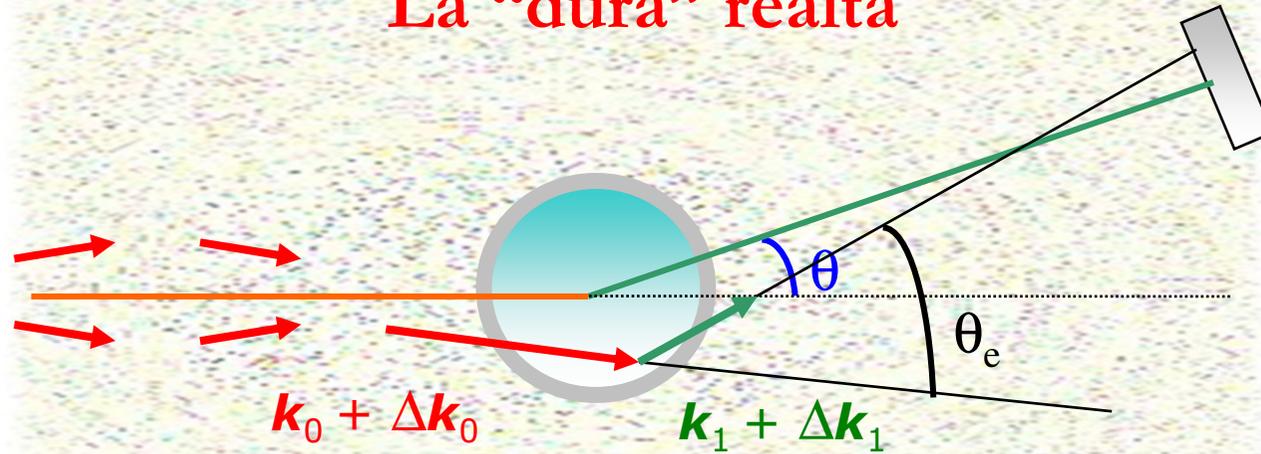
dello spettrometro perfetto

No background
Fascio uniforme e collimato
Definizione perfetta di k_0 e k_1
Elevata risoluzione angolare
Efficienza del rivelatore: 100%

del campione ideale

Nudo e con alta sezione d'urto
Poco assorbente
"puntiforme" (no dim., no MS)
Totalmente coerente/incoerente
Semplice (monoisotopico)
"Estremamente interessante"

La "dura" realtà



Real sample
Real instrument

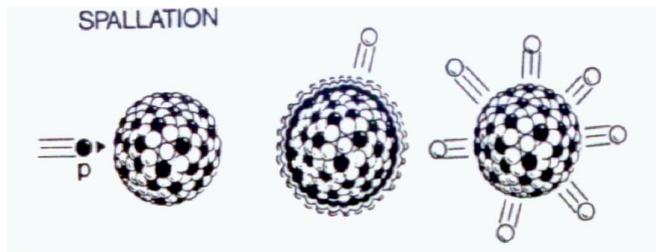
Effect	Uncertainty on	Main consequence
Background noise (hopefully constant in time!)	Zero-signal level	
Beam divergence Focussing devices	θ, E_0, E_1	Affect Q and E resolution
Monochromating/analysing system imperfection: TAS \rightarrow crystal quality TOF \rightarrow pulse duration, flight paths	E_0, E_1	
Finite detector size	θ , flight path (E_0, E_1)	
Detector efficiency		Signal attenuation and distortion
Container scattering and absorption	Bare sample signal	"Background", attenuation, MS
Sample absorption		Signal attenuation
Sample scattering		Multiple scattering
Finite sample size	θ , flight path (E_0, E_1 , absorption)	Q and E resolution, multiple scattering
Incoherent/Coherent too and "complex"

Produzione di neutroni

SPALLAZIONE

“to spall” = “scheggiare”

Bombardare un nucleo pesante (Uranio/Tantalio) con **PROTONI** di alta energia (\sim GeV)

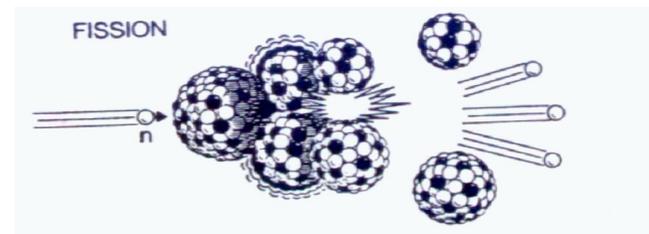


Varie particelle (protoni, neutrini...)
+ \sim 20 neutroni(/prot.) con energie dell'ordine di qualche MeV

FISSIONE

dell'Uranio (tipicamente)

Se un neutrone termico colpisce U, questo si scinde in due atomi più leggeri (es. Br e La) con emissione di energia (200MeV) + \sim 2.5 neutroni veloci, che possono dar luogo a *CHAIN reaction* (mantenuta con 1.5/2.5 neutroni per fissione).



\sim 1 neutrone (/fissione) con energie dell'ordine di 2 MeV

Da **MODERARE** poi alle energie termiche (25 meV), tramite scattering *anelastico* con sistemi leggeri (idrogeno, grafite, metano)

Rivelazione dei neutroni

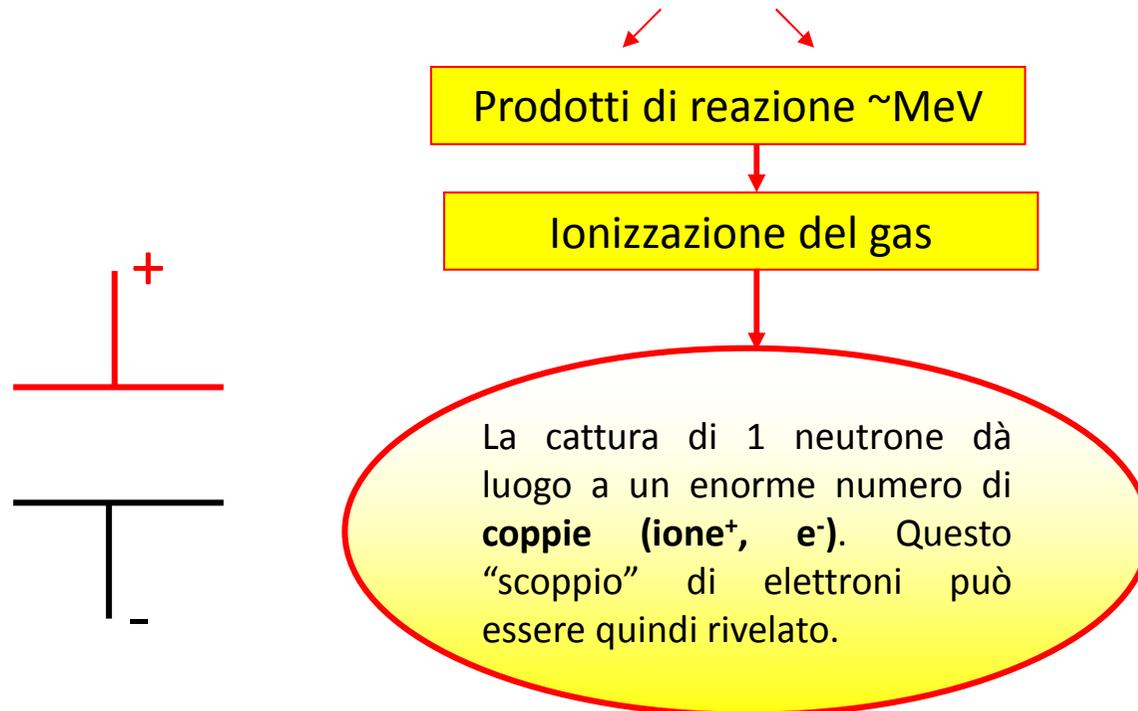
Il neutrone non è dotato di carica. La sua rivelazione con tecnologie standard richiede una *CONVERSIONE* in particelle secondarie rivelabili (elettroni).

Anche la rivelazione sfrutta specifiche reazioni nucleari del neutrone con elementi caratterizzati da alto assorbimento (per neutroni).

I rivelatori più utilizzati sono quelli *a gas*: di per sé ASSORBENTI e gassosi a temperatura ambiente (^3He) oppure gas “caricati” con isotopi altamente assorbenti ($^{10}\text{BF}_3$).

Esempio:

Al 93% la reazione: $^{10}\text{B} + \text{n} \rightarrow ^7\text{Li}^* + \alpha$



Spettroscopia neutronica

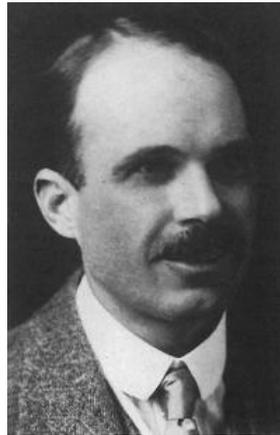
Ci sono 2 modi per determinare le energie dei neutroni:

- Determinarne la velocità tramite la misura del *tempo di volo* su distanze note (ToF) [richiede fasci pulsati]
- Determinarne la lunghezza d'onda attraverso la *diffrazione da cristalli*

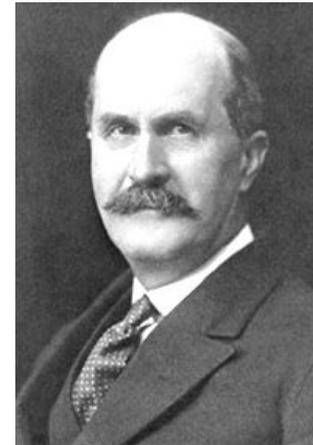
Mr. W. L. Bragg & father



the pioneers of diffractometry & of neutron beam monochromatization



W. L. Bragg



W. H. Bragg

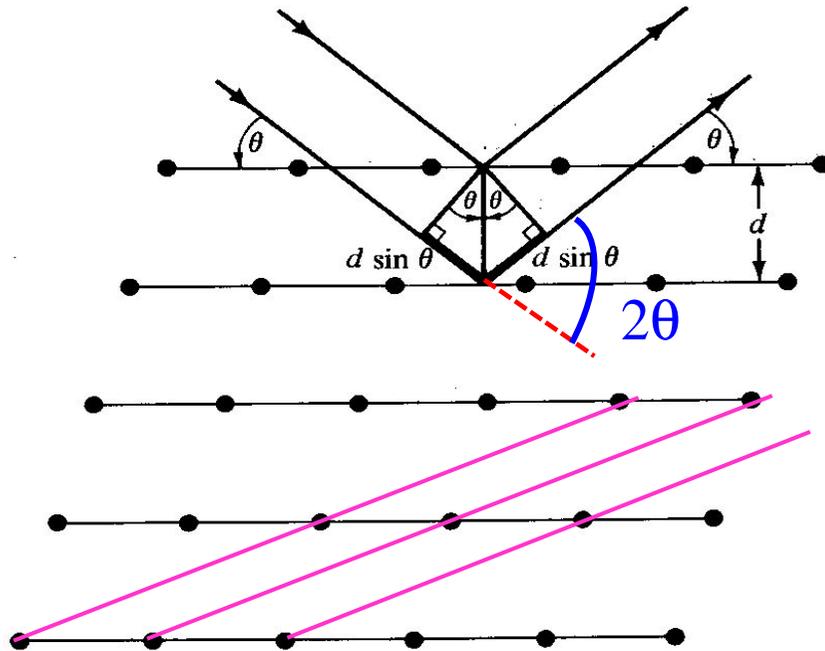
(W.L.) Bragg's law ruling the reflection of X rays or neutrons by crystals is at the basis of diffractometry and energy selection.

Bragg's law:

$$n\lambda = 2d \sin \theta$$

single crystal diffraction with

Monochromatic beams



λ is fixed \rightarrow a given d -spacing can give reflection only if $\lambda < 2d$ (Bragg's cutoff).

If λ is appropriate, a given d -spacing defines the set of crystal orientations that ensure the right θ for constructive interference and observation of a reflection

If the orientation is appropriate to observe reflection from a set of lattice planes, reflection takes places in a precise direction (incident beam, reflected beam and the normal to the planes must lie on the same plane)

By **rotating the crystal** it is possible to reach the condition for Bragg reflection from other sets of lattice planes (other d -spacings)

Bragg's law:

$$n\lambda = 2d \sin \theta$$

single crystal diffraction with

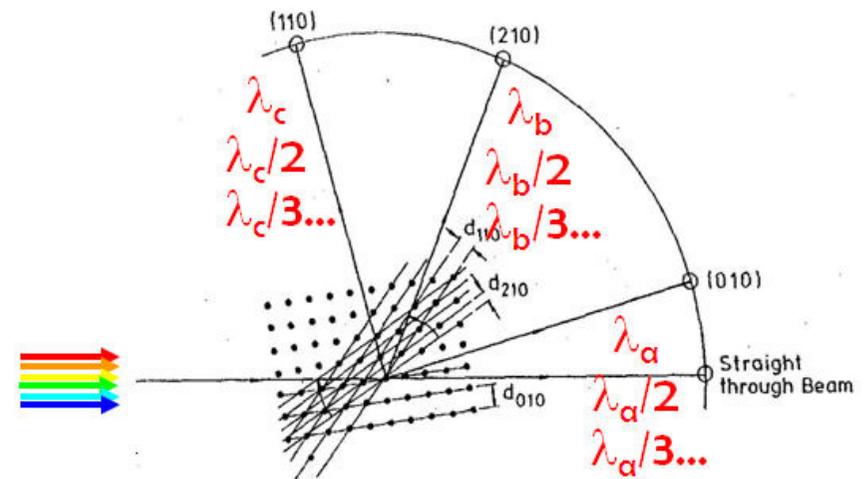
Polychromatic beams

Many λ 's \rightarrow various sets of lattice planes can have the appropriate orientation for Bragg's reflection.

A given d -spacing selects the particular wavelength that obeys Bragg's law.

Reflections due to different d -spacings correspond to different scattering angles

A certain d -spacing selects not only (its own) λ , but also $\lambda/2$, $\lambda/3$, giving reflection at the same scattering angle.

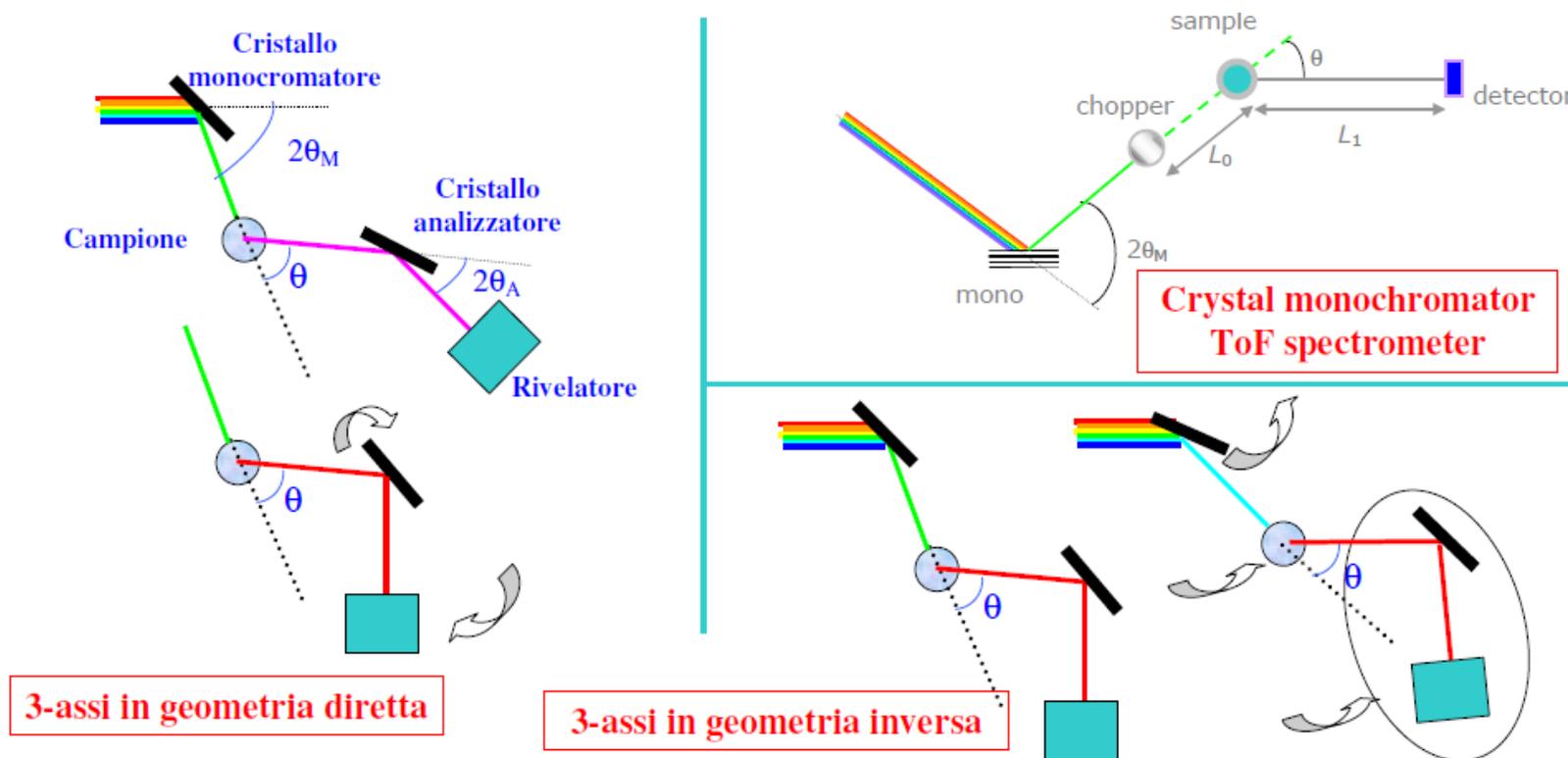


Spettrometri (strumenti per scattering anelastico)

Gli spettrometri esistenti sfruttano in genere una combinazione dei due metodi (ToF o cristalli) per fissare una delle due variabili (E_0 o E_1) e misurare/variare l'altra.

Caso particolare: *spettrometri a 3-assi su reattore*, che sfruttano solo la diffrazione da cristalli sia in geometria diretta che inversa.

Tutti gli altri spettrometri (anche "misti") vengono definiti in generale come *spettrometri a tempo di volo*. In questo caso vi è una grande variabilità nelle configurazioni possibili.



Spettrometro a 3 assi

- Posto su sorgente stazionaria (reattore)
- Sfrutta riflessione di Bragg da cristalli sia per l'energia incidente che per quella diffusa
- Le variabili fondamentali sono gli angoli di Bragg al monocromatore θ_M e all'analizzatore θ_A , e l'angolo di scattering θ . [per sistemi amorfi l'orientazione del campione non ha importanza].

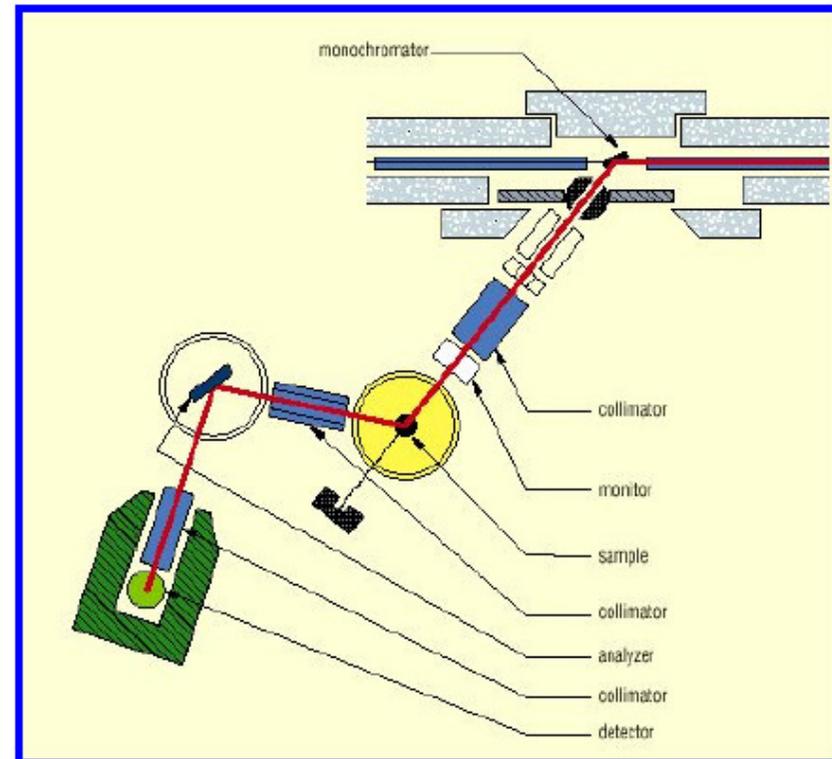
- Ciò che si misura veramente è:

in geom. diretta l'intensità $I(\theta, \theta_A)$ a θ_M fissato

in geom. inversa l'intensità $I(\theta, \theta_M)$ a θ_A fissato

[ciò comporta la necessità di muovere i vari componenti attorno ai **3 assi** di rotazione individuati da monocromatore, campione e analizzatore)

- In entrambe le geometrie, ciascuna terna $(\theta, \theta_M, \theta_A)$ definisce un valore di Q . La coppia (θ_M, θ_A) stabilisce ω . E' possibile fare misure in funzione dell'energia scambiata, a Q costante



Spettrometri a tempo di volo (ToF: Time-of-Flight)

- Posti “*naturalmente*” su sorgente pulsata, ma realizzabili anche su reattore tramite mono+chopper oppure 2 chopper (almeno), per ottenere fascio pulsato e monocromatico.

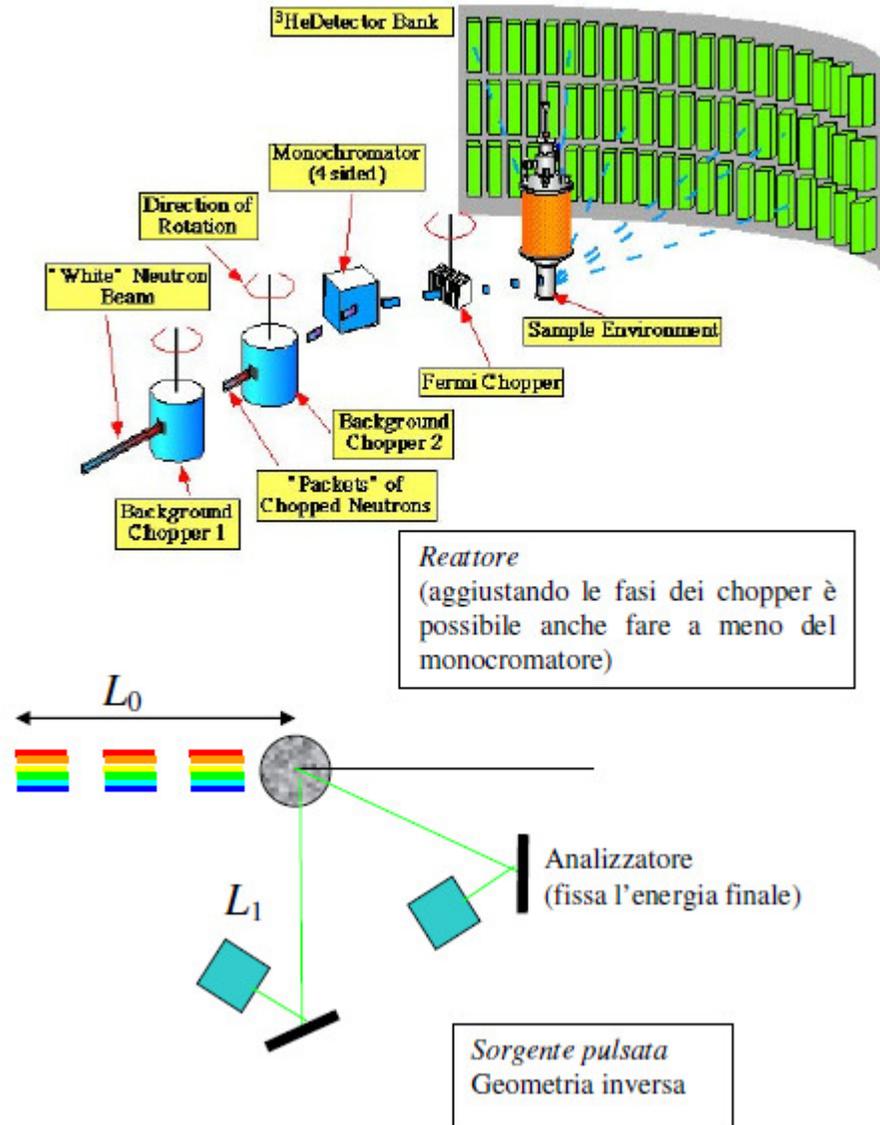
- Il tempo totale di volo di un neutrone è $t_f = \frac{L_0}{v} + \frac{L_1}{v'}$. Lo scattering è **anelastico**, quindi $v \neq v'$.

Se è fissata l'energia incidente/diffusa, la misura dei t_f (ad un certo angolo θ_0) permette di associare a ciascun canale temporale del rivelatore (a θ_0) un preciso valore dell'energia diffusa/incidente e quindi di risalire all'energia scambiata tramite:

$$v' = \frac{L_1}{t_f - L_0 \sqrt{\frac{m}{2E_0}}} \quad \text{oppure} \quad v = \frac{L_0}{t_f - L_1 \sqrt{\frac{m}{2E_1}}}$$

$$E = E_0 - \frac{1}{2} m v'^2 \quad \quad \quad E = \frac{1}{2} m v^2 - E_1$$

- Ai vari angoli, si misura l'intensità in funzione dei tempi di arrivo al detector. $I(\theta, t_f) \Leftrightarrow I(\theta, \omega)$



Vantaggi/svantaggi spettrometri 3-assi/ToF

3-assi

Vantaggi

- Molto “flessibile”
- Nel modo a Q -costante c'è relazione semplice fra intensità misurata e fattore di struttura dinamico cercato.

Svantaggi

- Tempi di conteggio lunghi (si misura un punto Q, ω alla volta)
- Strumento *complesso*, anche meccanicamente
- Muovere il campione può non essere indicato in alcuni casi

ToF

Vantaggi

- Interi profili in energia ottenibili in tempi brevi
- Geometria sperimentale fissa

Svantaggi

- Relazione più indiretta fra intensità raccolte e quantità fisiche cercate
- La regione cinematica accessibile è in parte limitata anche dalla geometria (in senso reale) dello spettrometro

Referenze

- [1] J.R.D. Copley, S.W. Lovesey, *Rep. Prog. Phys.* **38**, 461 (1975).
- [2] W. Marshall, S. Lovesey, “*Theory of Thermal Neutron Scattering*” (Clarendon, Oxford, 1971).
- [3] Autori Vari in “*Methods of Experimental Physics*”, Vol. 23 A, B, C (Neutron Scattering)
Ed. da K. Sköld e D. Price (Academic Press, London, 1987).
- [4] J. P. Hansen, I. R. McDonald, “*Theory of Simple Liquids*”, (Academic Press, London, 1986).
- [5] U. Balucani, M. Zoppi, “*Dynamics of the Liquid State*” (Clarendon Press, Oxford, 1994).
- [6] J.P. Boon, S. Yip, “*Molecular Hydrodynamics*” (McGraw-Hill, New York, 1980).
- [7] B. J. Berne and R. Pecora, “*Dynamic Light Scattering*” (Wiley, New York, 1976).
- [8] HERCULES Course – “*Neutron and synchrotron radiation for condensed matter studies*” (Les Editions de Physique, Les Hulis, 1993).