

Малоугловое рассеяние нейтронов в нормальном и сверхтекучем жидком гелии

Ю.М. Ципенюк

Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН, г. Москва, 119334, Россия

E-mail: tsip@kapitza.ras.ru

O. Kirichek

ISIS RAL, STFC, Oxfordshire OX110QX, UK

O. Petrenko

Warwick University, Coventry CV47AL, UK

Статья поступила в редакцию 29 марта 2013 г.

Представлены результаты экспериментов по малоугловому рассеянию нейтронов в жидком гелии в диапазоне температур 1,0–5 К, проведенных на импульсном источнике нейтронов ISIS (Англия). Подробные измерения углового распределения рассеянных нейтронов позволили обнаружить существенное изменение в температурной зависимости второго момента парной корреляционной функции (первой производной углового распределения при малых углах рассеяния). При высоких температурах угловое распределение рассеянных нейтронов следует классическому описанию малоуглового рассеяния, а при температурах ниже λ -точки наблюдается квантовое поведение — рассеяние нейтронов на квантовых флуктуациях. Экспериментально подтверждено, что во всей области температур сечение рассеяния нейтронов под нулевым углом определяется классическими термодинамическими флуктуациями плотности.

Представлено результати експериментів по малокутовому розсіяню нейтронів в рідкому гелії в діапазоні температур 1,0–5 К, які проведено на імпульсному джерелі нейтронів ISIS (Англія). Докладні виміри кутового розподілу розсіяних нейтронів дозволили виявити істотну зміну в температурній залежності другого моменту парної кореляційної функції (першої похідній кутового розподілу при малих кутах розсіяння). При високих температурах кутовий розподіл розсіяних нейтронів відповідає класичному опису малокутового розсіяння, а при температурах нижче λ -точки спостерігається квантова поведінка — розсіяння нейтронів на квантових флуктуаціях. Експериментально підтверджено, що в усій області температур переріз розсіяння нейтронів під нульовим кутом визначається класичними термодинамічними флуктуаціями.

PACS: 61.05.fg Рассеяние нейтронов (включая малоугловое рассеяние);
67.25.B– Нормальная фаза ^4He ;
67.25.dt Звук и возбуждения.

Ключевые слова: малоугловое рассеяние нейтронов, статический структурный фактор, сверхтекучесть, квантовые флуктуации.

Введение

Хорошо известно, что нейтроны идеально подходят для исследования возбуждений в конденсированных веществах и их структуры, так как длины волн тепловых нейтронов, лежащие в диапазоне от 0,5 до 10 Å, сравнимы с межатомными расстояниями, а их энергия

того же порядка, что и энергии элементарных возбуждений. Например, эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов в жидком гелии привели к установлению многих фундаментальных свойств этой квантовой жидкости, таких как подтверждение спектра возбуждений, выдвинутого теоретически Ландау, характер импульсного распределения атомов гелия в

нормальной и сверхтекучей фаз, относительная доля атомов гелия, находящихся в бозе-конденсате (см., например, работы [1–3]). С другой стороны, измерение упругого рассеяния нейтронов в жидком гелии в широком диапазоне углов, проведенное Свенссоном с соавторами [4], позволило детально измерить структурный фактор в широком температурном интервале. В частности, было показано, что положение основного пика в структурном факторе $S(Q, T)$ (здесь Q — импульс рассеяния, связанный с углом рассеяния θ соотношением $|Q| = (4\pi/\lambda)\sin(\theta/2)$) практически не изменяется, а при переходе через λ -точку лишь слегка (на 6%) изменяется его абсолютная величина.

В работе [4] измерения были проведены в диапазоне $Q > 1 \text{ \AA}^{-1}$, т.е. малоугловое рассеяние нейтронов (МУРН) не измерялось. Авторы этой работы использовали в области малых углов данные по рассеянию рентгеновских лучей [5], полученные при нескольких температурах — 4,6, 4,0, 3,3, 1,45, 0,38 К. Единственный эксперимент по МУРН был проведен достаточно давно, в 1953 г., Эгельстаффом и Лондоном [6]. В этой работе измерения проведены лишь в нескольких температурных точках и с достаточно большой статистической ошибкой, что позволяет сделать лишь качественные заключения о характере МУРН до и после сверхтекучего перехода. Конечно, современные ядерные реакторы и ускорительные импульсные источники нейтронов (spallation sources) и имеющиеся на них установки позволяют существенно улучшить качество получаемых результатов.

Фактическое отсутствие экспериментальных данных по МУРН в жидком гелии побудило нас провести его детальное измерение на современном уровне. Подробное исследование МУРН в жидком гелии было предпринято одним из авторов (Ю.М.Ц.) в ILL (Франция) [7]). Однако с экспериментальной точки зрения полученные результаты подвержены критике, так как эксперименты проводились с обычным гелием и вполне вероятно наличие твердого водорода и неона, что может существенно исказить получаемые данные. Кроме того, на стеклах криостата, по-видимому, имелись микроскопические загрязнения, что также могло приводить к увеличению фона в области малых Q , наблюдавшееся экспериментально.

Следует отметить, что малоугловое рассеяние дает возможность получить информацию о характере тепловых флуктуаций в жидкости. Малоугловое упругое рассеяние нейтронов есть фактически рассеяние на «готовых» квазичастицах. В гелии при конечных температурах тепловым образом возбуждаются фононы и ротонны, причем в области температур от 1 до 2,2 К преимущественно в гелии возбуждаются ротонны, а выше сверхтекучего перехода — фононы. «Размер» ротоннов, в отличие от «размера» фононов, не зависит от температуры (у всех одни и те же квазиимпульс и

энергия), поэтому можно надеяться, что это проявится каким-то образом в МУРН. Оценка размера ротона была проведена Бурковой и Питаевским [8] на основе волновой функции Фейнмана [9], вполне удовлетворительно описывающей спектр возбуждений.

Эксперимент

Описываемые эксперименты проводили на установке SANS2D на импульсном источнике нейтронов ISIS. Спектроскопически чистый гелий конденсировался в тонкостенной алюминиевой рабочей камере объемом 20 см^3 с помощью стандартной системы заполнения гелиевого криостата фирмы Various Oxford Instruments. Система стабилизации температуры позволяла ее поддерживать с точностью $\pm 10 \text{ мК}$. Измерения были проведены в интервале температур от 1 до 5 К. Длины волн падающих нейтронов лежали в диапазоне 2–12 Å.

Особое внимание нами было обращено на достоверность получаемых данных. Для учета фона (рассеяния нейтронов на стенках криостата) проводили измерения с пустым рабочим объемом при разных температурах. Измерения показали, что температурной зависимости фона не наблюдается. Кроме того, чтобы убедиться, что рассеяние на пузырьках, образующихся при кипении гелия, несущественно, были измерены МУРН при температуре 4,4 К при равновесном давлении паров, а также и при повышенном давлении (когда кипение отсутствует). Никакой разницы в получаемых радиальных распределениях рассеянных нейтронов обнаружено не было.

При рассмотрении малоуглового рассеяния всегда предполагается, что рассеяние нейтронов является упругим, но для рассеяния в жидкостях это, строго говоря, не так. В получаемые данные должна быть внесена поправка Плачека, учитывающая неупругость рассеяния, но для сверхтекучего гелия она не вычислена. Поэтому было проведено сравнение характеристик угловых распределений, полученных при одной и той же температуре, но при разных длинах волн падающих нейтронов (от 2 до 12 Å). С точностью порядка 5% никакой разницы в распределениях, т.е. вклада неупругих процессов, не обнаружено.

Теоретическое описание малоуглового рассеяния

Одной из основных характеристик в описании жидкости является статический структурный фактор $S(Q)$, который является мерой корреляции между положениями атомов. Эта величина непосредственно связана с макроскопическим сечением рассеяния $d\Sigma/d\Omega$ нейтронов:

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(Q) = \frac{\sigma_b}{4\pi} \rho_{\text{at}} S(Q), \quad (1)$$

где σ_b — сечение рассеяния нейтронов на связанном атоме гелия ($= 1,172$ бн), а ρ_{at} — плотность гелия.

Как было показано Голдштейном [10], при конечных температурах и малых Q структурный фактор может быть записан в виде ряда

$$S(Q) = n_0 kT \chi_T + \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n Q^{2n} r_g^{2n} [(2n+1)!]^{-1}, \quad (2)$$

где n_0 — концентрация атомов гелия, χ_T — изотермическая сжимаемость, а r_g^{2n} — четный момент парной корреляционной функции $g(r)$,

$$r_g^{2n} = \int r^{2n} g(r) d^3r. \quad (3)$$

Малоугловое рассеяние — это рассеяние при малых величинах передаваемого импульса Q . В этом случае выражение (2) приобретает вид

$$S(Q) \simeq n_0 kT \chi_T - r_g^2 \frac{Q^2}{6}. \quad (4)$$

Первый член в этой формуле $S(0)$ описывает сечение рассеяния под углом 0° и определяется чисто термодинамическими гидродинамическими флуктуациями в жидкости, т.е. когда жидкость можно считать непрерывной средой. Нас сейчас будет интересовать второй член в этом выражении.

Полученное выражение для статического структурного фактора, справедливое при малых Q , аналогично широко известной аппроксимации Гинье [11] для углового распределения интенсивности нейтронов, рассеянных на ансамбле случайно распределенных в пространстве частиц,

$$I(Q) = I(0) \exp(-Q^2 R_g^2 / 3) \simeq I(0) (1 - Q^2 R_g^2 / 3). \quad (5)$$

Если все частицы являются сферами одного радиуса R_0 , то входящий в выражение (5) параметр R_g , называемый радиусом инерции, равен $3R_0^2 / 5$. Таким образом, видно, что среднеквадратичный радиус парной корреляционной функции жидкости $r_g^2 = R_g^2 / 2$.

Экспериментальные результаты и их анализ

Согласно формулам (4) и (5), интенсивность I рассеянных нейтронов (как и статического структурного фактора) квадратично зависит от Q , что, естественно, надо проверять. На рис. 1 приведены экспериментально полученные сечения рассеяния нейтронов (радиальные распределения интенсивности) в зависимости от квадрата передаваемого импульса для нескольких температур (1, 2,1, 4,2, и 4,6 К). Приведенные данные — разница между интенсивностями рассеяния в криостате с жидким гелием и пустым криостатом. Следует отметить, что сечение рассеяния нейтронов в гелии

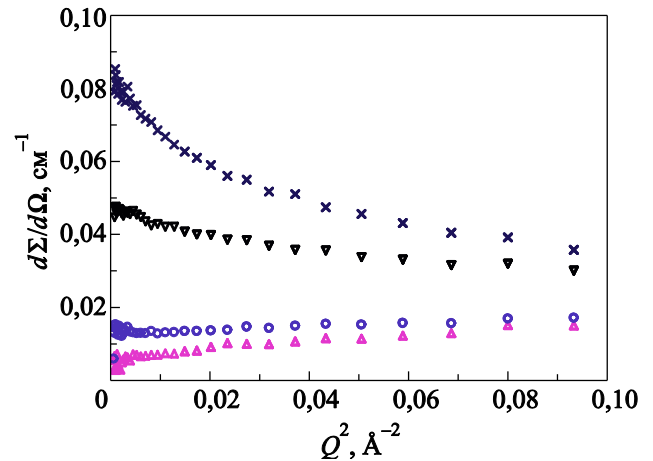


Рис. 1. Усредненное по радиусу сечение рассеянных нейтронов (в см^{-1}) в зависимости от квадрата передаваемого импульса при различных температурах T , К: 1 (Δ), 2,1 (\circ), 4,2 (∇), 4,6 (\times).

достаточно мало и при малых температурах становится сравнимым с рассеянием нейтронов на стенках криостата, что приводит к большим ошибкам в определении сечения рассеяния нейтронов в гелии.

Квадратичный закон действительно выполняется, но, как видно на рисунке, в очень небольшом диапазоне Q . Производная dS/dQ при малых Q равна $-(r_g^2/3)Q$, и она легко вычисляется по линейному участку в зависимости $I(Q^2)$.

Естественно, во-первых, посмотреть, как ведет себя при изменении температуры $S(0)$. Как видно из формулы (4), должна наблюдаться линейная зависимость, причем при нулевой температуре $S(0) = 0$. Действительно, как видно на рис. 2, эксперимент хорошо подтверждает эту зависимость.

Этот результат имеет принципиальное значение, так как справедливость описания термодинамических флук-

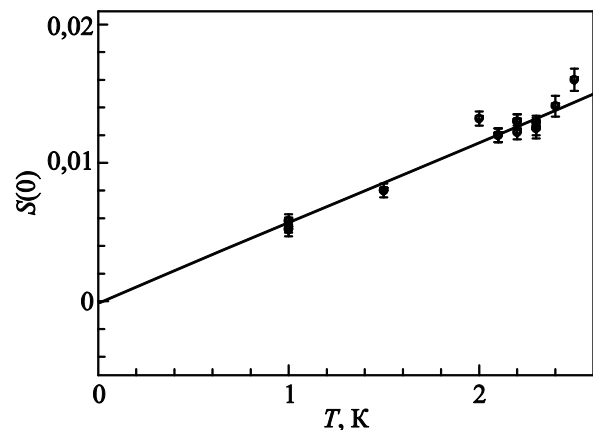


Рис. 2. Зависимость величины статического структурного фактора под нулевым углом от температуры. Через экспериментальные точки по методу наименьших квадратов проведена прямая линия.

туаций в квантовой жидкости классическим образом была показана только теоретически Прайсом [12].

Как видно на рис. 1, при температурах ниже λ -точки наклон кривых меняет знак. На рис. 3 приведены результаты линейной аппроксимации $I(Q^2)$, и, действительно, производная $dI/dQ^2(T)$ оказывается отрицательной при $T < 3$ К.

Температурный ход среднеквадратичного радиуса парной корреляционной функции жидкого гелия (производной от интенсивности рассеяния по квадрату передаваемого импульса). Для наглядности через экспериментальные точки по методу наименьших квадратов проведен аппроксимирующий полином II порядка.

Это свидетельствует о том, что описание рассеяния нейтронов, как рассеяние на тепловых флуктуациях при низких температурах, уже не является адекватным. Как показал Фейнман [9], при нулевой температуре структурный фактор должен линейно зависеть от импульса, т.е. описываться выражением

$$S(Q) = \hbar Q / 2ms, \quad (6)$$

где s — скорость первого звука, а m — масса атома гелия. Такой вид структурного фактора $S(k)$ для основного состояния сильно изменяется при переходе к повышенным температурам. При этом вероятность нахождения осциллятора, представляющего фонон с волновым числом k , в его n -м состоянии пропорциональна $\exp(-E/kT)$. Из этого следует (см., например, [13]), что

$$S(Q) \simeq kT / ms^2 + \hbar^2 Q^2 / 12mkT + \dots \quad (7)$$

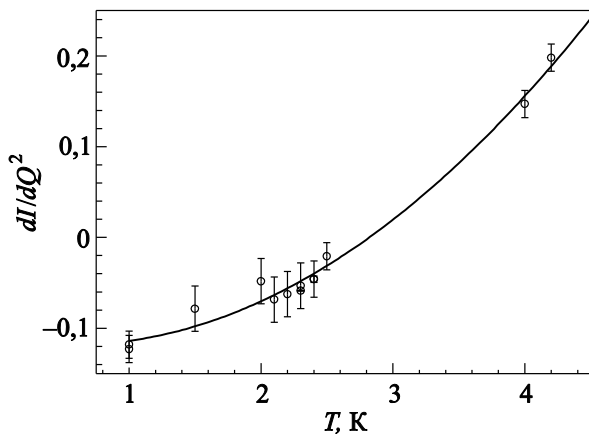


Рис. 3. Температурный ход среднеквадратичного радиуса парной корреляционной функции жидкого гелия (производной от интенсивности рассеяния по квадрату передаваемого импульса). Для наглядности через экспериментальные точки проведена аппроксимирующая кривая.

При $Q \rightarrow 0$ это выражение переходит в

$$S(Q) = \rho kT \chi_T, \quad (8)$$

т.е. совпадает с результатом классической теории флуктуаций (см. [14]). Следует отметить, что приведенное разложение функции, справедливое при повышенных температурах, не содержит члена, линейного по Q .

Таким образом, линейный ход $S(Q)$ обусловлен нулевыми колебаниями, а по мере повышения температуры все больший вклад начинают вносить тепловые флуктуации. Как следует из нашего эксперимента, вклад квантовых нулевых колебаний оказывается существенным вплоть до температуры $\simeq 3$ К.

Заключение

Показано, что рассеяние нейтронов в жидком гелии при высоких температурах хорошо описывается классической теорией как рассеяние на тепловых колебаниях, причем рассеяние под углом 0° во всей области температур следует линейному закону, обращаясь в нуль при нуле температуры. Кроме того, эксперименты свидетельствуют о том, что по мере уменьшения температуры все больший вклад дает рассеяние на квантовых колебаниях.

Авторы глубоко признательны Ричарду Хеенану (Richard Heenan) за помощь в проведении экспериментов, а С.М. Апенко — за плодотворное обсуждение работы.

1. E.C. Svensson and V.F. Sears, *Progr. Low Temp. Phys.*, D.F. Brewer (ed.), **11**, 189 (1987).
2. H.R. Glyde and E.C. Svensson, in: *Methods Exp. Phys. (Neutron Scattering)* **23B**, 303 (1987).
3. И.В. Боговяленский, Л.В. Карнацевич, Ж.А. Козлов, В.Г. Колобродов, В.Б. Приезжев, А.В. Пучков, А.Н. Скоморохов, *ФНТ* **20**, 626 (1994) [*Low Temp. Phys.* **20**, 489 (1994)].
4. E.C. Svensson, V.F. Sears, A.D.B. Woods, and P. Martel, *Phys. Rev. B* **21**, 21 (1980).
5. R.B. Hallock, *Phys. Rev. A* **5**, 320 (1972).
6. P.A. Egelstaff and H. London, *Proc. Low Temp. Phys. Conf.*, Houston (1953), p. 374.
7. Yu.M. Tsipenyuk and R.P. May, *arXiv.org/cond-mat/0207278*.
8. А.А. Буркова, Л.П. Питаевский, *ЖЭТФ* **83**, 202 (1982).
9. R.P. Feynman, *Phys. Rev.* **94**, 262 (1954).
10. L. Goldstein, *Phys. Rev.* **84**, 446 (1951).
11. A. Guinier and G. Fournet, *Small-Angle Scattering of X-Rays*, Wiley Sons Inc., New York (1955).
12. P.J. Price, *Phys. Rev.* **94**, 257 (1954).
13. Н. Марч, М. Тоси, *Движение атомов жидкости*, Металлургия, Москва (1980).
14. R.P. Feynman and M. Cohen, *Phys. Rev.* **102**, 1189 (1956).

Small-angle scattering of neutrons from normal and superfluid liquid helium

Yu.M.Tsipenyuk, O. Kirichek, and O. Petrenko

The results of experiments on small-angle neutron scattering in liquid helium in the range of temperatures of 1–5 K, performed on a neutron pulse source ISIS (England), are presented. The detailed measurements of angular distribution of scattered neutrons allowed one to observe an essential change in temperature dependence of the second moment of pair correlation function (the first derivative of angular distribution at small angles of scattering). At high temperatures the angular distribution of scattered neutrons follows the

classical description of small-angle scattering, but at temperatures below the λ -point a quantum behavior is observed neutron-scattering by quantum fluctuations. It is experimentally confirmed that in the whole temperature range the cross-section of neutron scattering at a zero angle is determined by the classical thermodynamic fluctuations of density.

PACS: *61.05.fg* Neutron scattering (including small-angle scattering);
67.25.B- Normal phase of ^4He ;
67.25.dt Sound and excitations.

Keywords: small-angle scattering of neutrons, statical structural factor, superfluid, quantum fluctuations.