

Alma Mater Studiorum – Università di Bologna

Scuola di Scienze
Dipartimento di Fisica e Astronomia
Corso di Laurea in Fisica

SCATTERING ANELASTICO DI NEUTRONI

Relatore:
Prof. Federico Boscherini

Presentata da:
Vladyslav Romankov

Sessione III
Anno accademico 2014/2015

Abstract

Lo scopo della tesi è di illustrare le principali tecniche spettroscopiche per l'indagine della materia mediante l'uso dei neutroni come sonda, con particolare attenzione rivolta alla diffusione anelastica su campioni monocristallini. Nel testo vengono esposti i processi di produzione dei neutroni tramite spallazione, fissione e fusione nucleare, e si descrive il reattore nucleare dell'Institut Laue-Langevin (ILL) di Grenoble. Inoltre, viene presentato uno studio della curva di dispersione dei modi vibrazionali acustici di un campione monocristallino di β -stagno a temperatura ambiente, effettuato presso l'ILL tramite un diffrattometro a triplo-asse. I risultati sono confrontati con i modelli teorici disponibili (S. H. Chen) e con dati sperimentali noti (J. M. Rowe).

Indice

1. Diffusione di neutroni in fisica della materia.....	2
1.1 – I neutroni.....	2
1.2 – Scattering.....	4
1.3 – Scattering coerente e incoerente.....	7
1.4 – Tecniche spettroscopiche.....	11
2. Sorgenti di neutroni.....	16
2.1 – Reattori nucleari.....	16
2.2 – Institut Laue-Langevin.....	20
2.3 – Sorgenti a spallazione.....	22
3. Diffusione anelastica di neutroni mediante diffrattometri a triplo-asse...	24
3.1 – Struttura cristallina.....	24
3.2 – Vibrazioni reticolari.....	30
3.3 – Diffrattometro a triplo-asse.....	33
4. Studio della relazione di dispersione acustica di un campione di β -stagno lungo la direzione (001).....	39
4.1 – Caratteristiche del β -stagno.....	39
4.2 – Processo sperimentale e acquisizione dati.....	40
4.3 – Risultati ottenuti.....	42
5. Conclusioni.....	46
6. Note e Bibliografia.....	47

Introduzione

Lo scopo di questa tesi è quello di illustrare le possibilità offerte dallo studio della materia tramite la spettroscopia neutronica, e in particolare della diffusione anelastica dei neutroni per lo studio dei modi vibrazionali nei cristalli.

La partecipazione alle *Giornate Didattiche 2015* organizzate dalla Scuola Italiana di Spettroscopia Neutronica (SISN), mi ha permesso di effettuare un approccio teorico-pratico all'uso dei neutroni come sonda per lo studio della materia. Le lezioni della SISN, che ho frequentato, sono state utili per capire le tecniche neutroniche spettroscopiche disponibili per la ricerca scientifica e i campi di applicazione in cui vengono utilizzate, che si estendono dalla fisica della materia alla chimica, alla biologia, alla geologia e al restauro dei beni culturali. Il progetto mi ha permesso di visitare l'Institut Max Von Laue – Paul Langevin (ILL) di Grenoble (Francia), una delle strutture più importanti a livello mondiale per la ricerca scientifica tramite l'applicazione delle tecniche di spettroscopia neutronica. Qui ho avuto modo di partecipare a un esperimento didattico con un gruppo di altri cinque studenti della SISN, per familiarizzare con la tecnica di diffusione anelastica di neutroni su campioni monocristallini e con l'elaborazione dei dati acquisiti, usando il diffrattometro a triplo-asse IN3.

Il primo capitolo illustra le proprietà dei neutroni e spiega la ragione per cui vengono utilizzati come sonde per lo studio della materia. Viene esposta in modo sommario la teoria della diffusione, sono presentate le principali tecniche spettroscopiche e illustrati i maggiori campi di applicazione di ogni tecnica.

Nel secondo capitolo sono esposte le principali tecniche per la produzione dei neutroni, sottolineando i vantaggi/svantaggi di ciascuna tecnica. Inoltre si illustrano le caratteristiche del reattore a fissione nucleare dell'Institut Laue-Langevin, di cui si descrivono la struttura e il funzionamento.

Il terzo capitolo prende in esame la struttura microscopica dei cristalli e propone un modello teorico per l'interpretazione dei modi vibrazionali della struttura cristallina. Viene poi descritto in modo dettagliato il diffrattometro a triplo-asse IN3 e spiegato come questo sia utilizzato per lo studio della diffusione anelastica dei neutroni.

Il quarto capitolo descrive in modo dettagliato le proprietà del campione di stagno usato nel corso dell'esperimento svolto presso l'ILL. Si spiegano le dinamiche della fase sperimentale e si espongono i risultati ottenuti, che vengono successivamente confrontati con i modelli teorici e i dati sperimentali ottenuti da altri gruppi di ricerca.

Nel testo verrà usata la notazione del grassetto per i vettori, mentre nelle formule si userà il simbolo di vettore (freccina sopra il vettore). Le note citate nel corso del testo tra parentesi quadre sono riportate, insieme alla bibliografia, a fine testo.

Durante le lezioni didattiche della SISN è stato fornito parte del materiale bibliografico riportato.

Capitolo 1

Diffusione di neutroni in fisica della materia

1.1 – I neutroni

Agli inizi del XX secolo le evidenze sperimentali permisero di dedurre che gli atomi della materia sono composti da tre tipi di particelle subatomiche: l'elettrone, il protone e il neutrone. Gli ultimi due costituiscono il nucleo atomico, cioè la parte più massiva dell'atomo stesso.

Secondo il modello di Bohr, gli elettroni ruotano attorno al nucleo su orbite quantizzate per l'effetto dell'interazione Coulombiana (Fig 1.1). La meccanica quantistica invece esprime tali orbite tramite una densità di probabilità dell'elettrone di trovarsi in una specifica regione di spazio [1].

L'esistenza del neutrone nel nucleo atomico venne confermata sperimentalmente da James Chadwick nel 1932 che, tramite misurazioni delle emissioni del berillio bombardato da particelle α , dimostrò l'esistenza della particella neutra di massa prossima al protone.

Oggi sappiamo che il neutrone è composto, a sua volta, da tre particelle elementari: un quark up ($2/3$ carica elettrica) e due quark down ($-1/3$ carica elettrica), legati assieme dalla forza nucleare forte, che garantiscono al neutrone la neutralità rispetto alla carica elettrica (Fig 1.2).

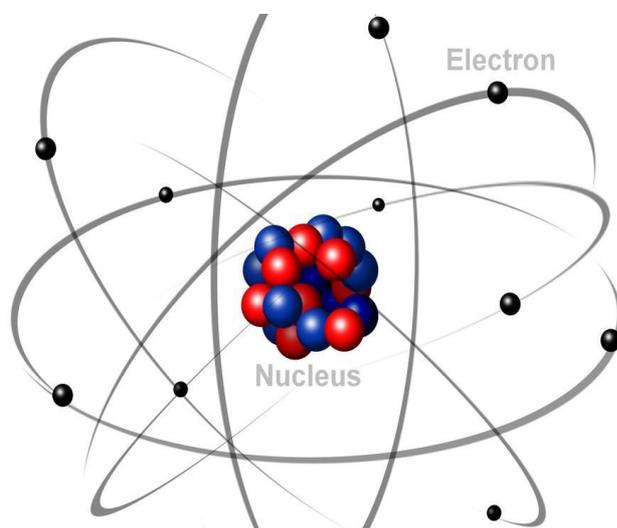


Fig. 1.1: Struttura di un atomo secondo il modello di Bohr. Il nucleo è costituito da neutroni (rosso) e da protoni (blu) legati tra loro tramite forza forte. Immagine ripresa da: vivalascuola.studenti.it.

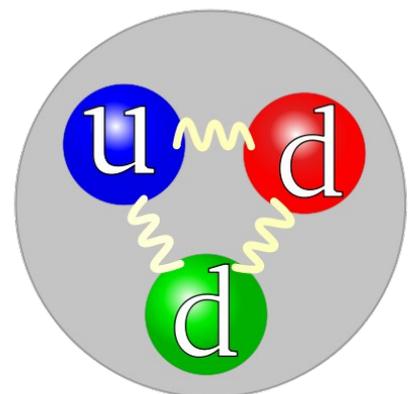
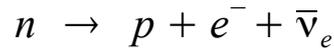


Fig. 1.2: Struttura a quark del neutrone.

Il neutrone ha una massa a riposo di $1,675 \times 10^{-27}$ kg, cioè $939,57 \text{ MeV}/c^2$ e carica elettrica nulla. In quanto stato legato di tre quark, è un fermione (spin $1/2$) ed appartiene alla categoria dei barioni. Il suo momento di dipolo magnetico è $\mu = -1,91\mu_N$, con $\mu_N = 5,05 \times 10^{-27}$ J/T magnetone nucleare.

Il neutrone allo stato libero è instabile e decade in protone, elettrone e antineutrino elettronico, tramite decadimento β , con vita media di circa 881 ± 1 secondi (indicativamente 15 minuti):



La natura elettricamente neutra garantisce al neutrone un'alta penetrazione nella materia e un'interazione nucleare a corto range della forza forte (10^{-15} m) con i nuclei atomici, fenomeno che ne permette l'uso per lo studio degli atomi più leggeri, una caratteristica molto rilevante rispetto ad alcune altre tecniche di indagine con sensibilità strutturale diretta in fisica della materia.

Una caratteristica molto importante del neutrone è la sua sensibilità isotopica, proprietà che permette di distinguere i segnali provenienti da isotopi diversi, a parità di numero atomico.

La presenza dello spin e del momento magnetico permette di investigare la struttura magnetica e le sue fluttuazioni nei nuclei atomici, e con questo lo studio di nuovi materiali magnetici.

Come sarà illustrato nel paragrafo 1.3, l'analisi della diffusione coerente mostra le proprietà collettive della struttura microscopica del campione e della dinamica dell'interazione, mentre l'analisi della diffusione incoerente rivela le caratteristiche del singolo atomo.

Come verrà illustrato nel capitolo 2, uno dei processi di produzione dei neutroni per indagini in fisica della materia è tramite reattori a fissione nucleare. Le particelle così prodotte sono emesse a energie molto elevate (circa 10 – 100 MeV), con una lunghezza d'onda di de Broglie talmente piccola da non permettere uno studio adeguato della materia. Tali energie sono oltretutto distruttive, poiché gli atomi vengono strappati via dal campione in esame.

Per ovviare a questo, i fasci di neutroni vengono fatti passare attraverso moderatori costituiti tipicamente da acqua o idrogeno liquido, e posti in prossimità del reattore nucleare stesso. Le energie dei neutroni vengono così diminuite tramite collisioni e il fascio uscente si trova in equilibrio termico con il moderatore stesso.

Lo spettro delle energie, dunque, può essere molto ampio e si possono distinguere sommariamente cinque categorie energetiche, dipendenti dalle velocità delle particelle: neutroni freddi, con energie dell'ordine di qualche meV; termici, con Energia di circa 25 meV; epitermici, con $E = 1$ eV; lenti, con Energie tra 1 e 100 keV; veloci, con $E > 100$ keV. Ognuna di queste categorie permette un'interazione ad un ordine di scala diverso della materia, come sarà illustrato più avanti.

Ricordando la definizione classica di energia e la relazione di de Broglie per la quantità di moto:

$$E = \frac{p^2}{2m} \quad (1.1)$$

$$p = \hbar k = \frac{h}{\lambda} \quad (1.2)$$

si può ottenere la seguente relazione tra la lunghezza d'onda e la quantità di moto di una particella:

$$\lambda = \frac{h}{mv} \quad (1.3)$$

con le velocità dei neutroni del flusso uscente dal reattore che seguono la legge di distribuzione di Maxwell-Boltzmann:

$$\lambda_{max} = \frac{h}{(3mk_B T)^{1/2}} \quad (1.4)$$

$$E = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{3}{2}k_B T \quad (1.5)$$

$$E = \frac{h^2}{2m\lambda^2} = \frac{81.799}{\lambda^2} \quad \text{con } \lambda(\text{\AA}) \text{ e } E(\text{meV}) \quad (1.6)$$

I neutroni principalmente usati nella spettroscopia neutronica sono quelli a temperatura $T = 293 \text{ K}$ (neutroni termici), a cui corrisponde una lunghezza d'onda comparabile con le dimensioni atomiche e adatta agli esperimenti di scattering [2]:

$$\lambda = \left(\frac{81,799}{E_{293K}} \right)^{1/2} = 1,8 \text{ \AA} \quad (1.7)$$

1.2 – Scattering

Dato un flusso di neutroni con vettore d'onda \mathbf{k}_0 , la funzione d'onda incidente sul campione può essere scritta come onda piana $\Psi_{inc} = A e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{x}}$. Poiché la forza nucleare responsabile della diffusione agisce su distanze dell'ordine di $10^{-14} - 10^{-15} \text{ m}$ e la lunghezza d'onda dei neutroni termici è di $2 \times 10^{-10} \text{ m}$ circa, si verifica l'effetto della diffrazione ottica e l'onda rappresentata il neutrone diffuso assume un andamento sferico (Fig. 1.3): $\Psi_{scat} = -A \frac{b}{r} e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}}$ dove r indica la posizione dell'onda e la costante b esprime una distanza in metri che viene determinata sperimentalmente, meglio nota come lunghezza di scattering.

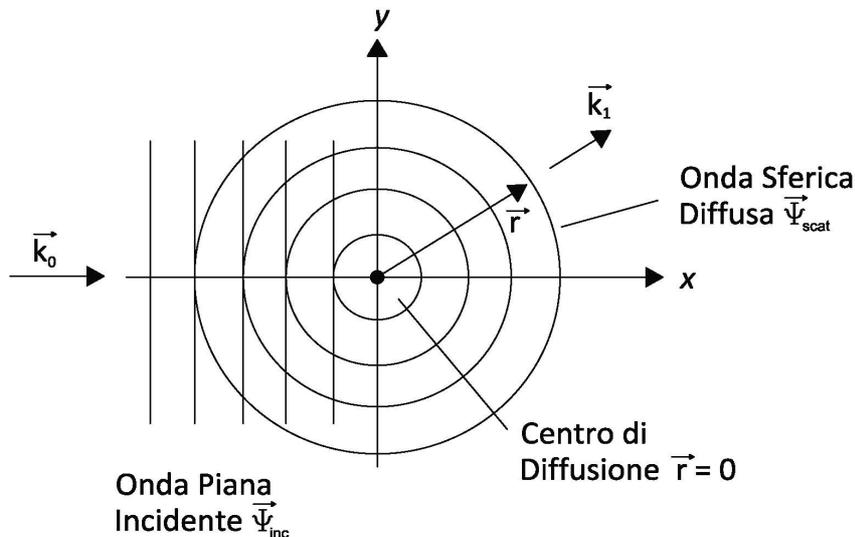


Fig. 1.3: diffrazione di un'onda piana, con centro di diffusione il punto $r = 0$.

Si consideri la geometria rappresentata in Fig. 1.4 e le seguenti notazioni:

$\vec{Q} = \vec{k}_0 - \vec{k}_1$ vettore d'onda scambiato nell'interazione;

Φ_i flusso incidente, cioè il numero di neutroni incidenti per unità di area e tempo;

N numero di nuclei presenti nel campione;

dn numero di neutroni diffusi, per unità di tempo, in un angolo solido $d\Omega$ centrato sul vettore d'onda uscente k_1 ;

$E = \hbar\omega = E_0 - E_1$ Energia scambiata nell'interazione;

θ angolo di diffusione rispetto al piano di riferimento;

ε efficienza del rivelatore, dipendente dall'energia del neutrone misurata.

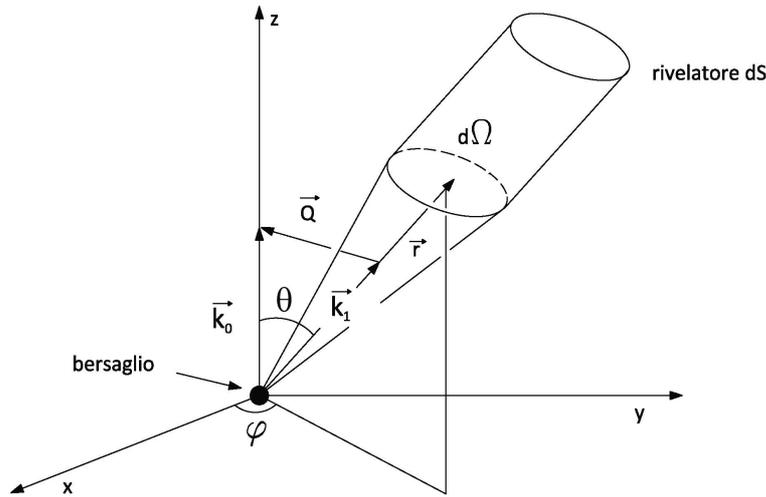


Fig. 1.4: geometria 3D di uno scattering di neutroni, diffusi da un nucleo posto nel centro del sistema di riferimento.

Per il conteggio dei neutroni diffusi vale la formula (1.8), con le approssimazioni sottostanti:

$$dn = \left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_1} \right) \Phi_i N \varepsilon(\theta, E_1) d\Omega dE_1 \quad (1.8)$$

- il flusso incidente risulta molto flebile, tale da poter trascurare la mutua interferenza tra i neutroni;
- i nuclei sono sufficientemente distanti tra loro per cui le interazioni atomo – nucleo possono considerarsi singolarmente;
- l'effetto dello scattering multiplo viene trascurato;

La grandezza $\left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_1} \right)$ viene detta sezione d'urto doppia differenziale e se non viene effettuata un'analisi in energia della diffusione, risulta più utile esprimere il suo integrale in energia:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \int_0^\infty \left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_1} \right) dE_1 \quad (1.9)$$

L'integrale (1.9) fornisce la sezione d'urto differenziale, cioè la probabilità del nucleo di diffondere il neutrone nell'angolo solido $d\Omega$.

Un rivelatore di area dS posto oltre il campione misura il numero di particelle rivelate nell'angolo solido $d\Omega$, a un dato angolo di diffusione θ . Se v è la velocità del flusso di particelle, il flusso è dato da $\Phi = |\Psi_{inc}|^2 v = A^2 v$, e il numero di neutroni rilevati da dS si ricava dalla seguente formula:

$$dn = v dS |\Psi_{scat}|^2 = v dS \frac{A^2 b^2}{r^2} = v A^2 b^2 d\Omega \quad (1.10)$$

Sostituendo la (1.10) nell'integrale dell'inversa della formula (1.9), si ottiene l'identità (1.11):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{v A^2 b^2 d\Omega}{v A^2 d\Omega} = b^2 \quad (1.11)$$

Tale probabilità integrata nell'angolo solido 4π fornisce la sezione d'urto totale σ_{tot} , cioè:

$$\sigma_{tot} = 4\pi b^2 \quad (1.12)$$

La grandezza σ_{tot} viene solitamente misurata in barns ($1\text{bn} = 10^{-28} \text{m}^2$). La lunghezza di scattering b dipende dagli atomi considerati e dallo spin del sistema nucleo – neutrone.

Si consideri un nucleo del campione in esame con momento angolare intrinseco di spin nullo: $l = 0$. Poiché il neutrone ha spin $s = 1/2$ (in unità di costante di Planck ridotta), lo spin totale $j = l + s$ può assumere solo il valore di $1/2$, cioè si ha un solo valore di lunghezza di scattering b .

Nel caso che il nucleo abbia spin $l \neq 0$, si osserveranno due valori di spin totale j distinti, dati da $j_+ = l + 1/2$ e $j_- = l - 1/2$, a cui corrispondono due valori distinti di b , b_+ e b_- rispettivamente.

Nel caso il fascio di neutroni incidenti non sia polarizzato, si ha una probabilità uguale che lo spin del neutrone interagente sia up ($1/2$) o down ($-1/2$). Tuttavia si dimostra [3] che la probabilità di avere una lunghezza di scattering b_+ è maggiore e che tale probabilità è data dalle leggi di accoppiamento dello spin e del momento magnetico orbitale (1.13):

$$p(b_+) = \frac{2(l+1)}{2(l+1)+2l} \quad p(b_-) = \frac{2l}{2(l+1)+2l} \quad (1.13)$$

Nella spettroscopia a raggi X, la sezione d'urto ha una dipendenza lineare crescente all'aumentare del numero atomico Z . Questo non è più vero nel caso dei neutroni, dove b non ha un andamento crescente, ma piuttosto casuale, e può assumere valori sia positivi che negativi, come mostrato da alcuni esempi in tabella 1.1. La maggioranza dei nuclei atomici è caratterizzata da un valore positivo di b , che ha il significato di una distanza "reale" dell'interazione. I valori negativi di b rappresentano, invece, una distanza "immaginaria" che può essere interpretata come un numero (immaginario) che indica un assorbimento del neutrone da parte del nucleo stesso, fenomeno che produce una risonanza.

Valori di lunghezze di scattering e sezioni d'urto di alcuni isotopi.					
Isotopo	Spin	$b_{coerente}$ (fm)	$b_{incoerente}$ (fm)	$\sigma_{coerente}$ (bn)	$\sigma_{incoerente}$ (bn)
^1H	1/2	-3.7406	25.274	1.7583	80.27
^2H	1	6.671	4.04	5.592	2.05
^3He	1/2	5.74	-2.5	4.42	1.6
^4He	0	3.26	0	1.34	0
^{12}C	0	6.6511	0	5.559	0
^{16}O	0	5.803	0	4.232	0
^{56}Fe	0	9.94	0	12.42	0
^{58}Ni	0	14.4	0	26.1	0
^{120}Sn	0	6.49	0	5.29	0
^{235}U	7/2	10.47	± 1.3	13.78	0.2

Tabella 1.1: valori ripresi da *Neutron News* Vol. 3, 1992, p. 29 – 37.

Un andamento completo della lunghezza di scattering coerente degli isotopi più stabili degli elementi in funzione del numero atomico è riportato in Fig. 1.5.

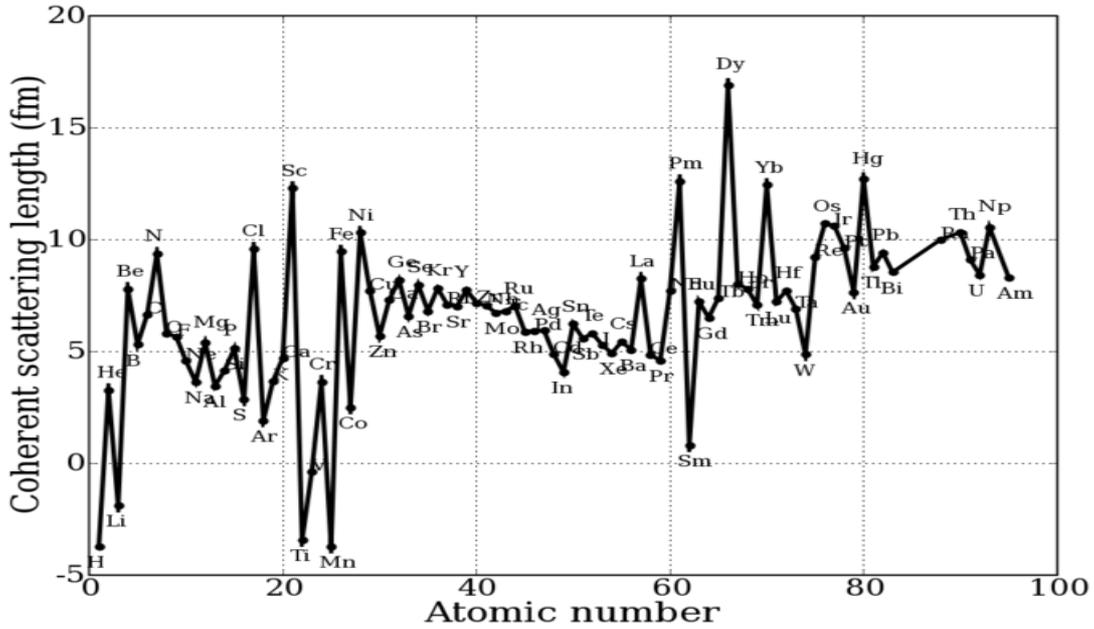


Fig. 1.5: lunghezze di scattering coerente (fm) al variare del numero atomico Z .

1.3 – Scattering coerente e incoerente

Per esprimere la sezione d'urto differenziale in un'interazione di tipo forte può essere usata l'approssimazione di Born, basata sulla teoria perturbativa di primo ordine, che permette di scrivere la (1.14), con notazione sottostante:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\vec{k}_0 s_0 l_0 \rightarrow \vec{k}_1 s_1 l_1} = \frac{1}{N} \frac{k_1}{k_0} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2}\right)^2 |\langle \vec{k}_1 s_1 l_1 | V(\vec{r}) | \vec{k}_0 s_0 l_0 \rangle|^2 \quad (1.14)$$

dove $V(\mathbf{r})$ è il potenziale tra il nucleo e il neutrone, che determina il passaggio del sistema sonda – campione dallo stato iniziale $\mathbf{k}_0 s_0 l_0$ allo stato finale $\mathbf{k}_1 s_1 l_1$; \mathbf{r} è la distanza neutrone – nucleo; \mathbf{k} è il vettore d'onda del neutrone incidente (\mathbf{k}_0) e quello diffuso (\mathbf{k}_1); s è lo spin neutrone prima dell'interazione (s_0) e dopo (s_1); l è lo stato iniziale (l_0) e finale (l_1) del campione preso in esame. Per esprimere la conservazione dell'energia, si introduce la delta di Dirac $\delta(E + E_{l_0} - E_{l_1})$ in (1.15), con E_{l_0} e E_{l_1} energie del campione prima e dopo l'urto, E energia scambiata nell'interazione. Poiché gli stati iniziali (l_0) e (s_0) sono distribuiti con probabilità $\rho(l_0)$ e $\rho(s_0)$, sommando gli stati iniziali e finali (l_1) e (s_1) e mediando i valori si esprime la (1.16).

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{\vec{k}_0 s_0 l_0 \rightarrow \vec{k}_1 s_1 l_1} = \frac{1}{N} \frac{k_1}{k_0} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2}\right)^2 |\langle \vec{k}_1 s_1 l_1 | V(\vec{r}) | \vec{k}_0 s_0 l_0 \rangle|^2 \delta(E + E_{l_0} - E_{l_1}) \quad (1.15)$$

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1} = \frac{1}{N} \frac{k_1}{k_0} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2}\right)^2 \sum_{l_0 s_0} \rho_{l_0} \rho_{s_0} \sum_{l_1 s_1} [|\langle \vec{k}_1 s_1 l_1 | V(\vec{r}) | \vec{k}_0 s_0 l_0 \rangle|^2 \delta(E + E_{l_0} - E_{l_1})] \quad (1.16)$$

La migliore approssimazione del potenziale di interazione $V(\mathbf{r})$ che tiene in considerazione dei contributi minori, dovuti ad altri tipi di interazioni (come l'interazione debole e quella elettromagnetica), è dovuta ad un approccio euristico. La rappresentazione analitica che più si avvicina ai fatti sperimentali è lo pseudo-potenziale di Fermi:

$$V(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b \delta(\vec{r} - \vec{R}) \quad (1.17)$$

con δ delta di Dirac, \mathbf{R} posizione istantanea del nucleo ed \mathbf{r} posizione istantanea del neutrone. Utilizzando la funzione d'onda del neutrone precedentemente indicata (onda piana) si esprime la (1.18).

Esprimendo la δ di Dirac tramite la rappresentazione integrale, introducendo gli operatori di Heisenberg con la rappresentazione dipendente dal tempo, e sostituendo le somme sugli stati finali con integrali, si ottiene la (1.19),

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1} = \frac{1}{N} \frac{k_1}{k_0} \sum_{l_0} \rho_{l_0} \sum_{l_1} \left| \sum_i b_i \langle l_1 | e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i} | l_0 \rangle \right|^2 \delta(E + E_{l_0} - E_{l_1}) \quad (1.18)$$

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1} = \frac{1}{N} \frac{k_1}{k_0} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{ij} \langle b_i^* b_j e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(t)} \rangle e^{-i\frac{E}{\hbar}t} dt \quad (1.19)$$

dove \mathbf{Q} è la quantità di moto scambiata e $e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(t)} = e^{i\mathbf{H}t/\hbar} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(0)} e^{-i\mathbf{H}t/\hbar}$.

Quando gli spin dei nuclei e gli isotopi sono casualmente distribuiti nel campione, è possibile disaccoppiare $R_i(t)$ e b_i e scrivere la (1.20):

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1} = \frac{1}{N} \frac{k_1}{k_0} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{ij} \langle b_i b_j \rangle \langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(t)} e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} \rangle e^{-i\omega t} dt \quad (1.20)$$

Se si considera un campione con isotopi di elementi dallo spin non nullo, le lunghezze di scattering b_i possono essere differenti per nuclei nelle diverse posizioni R_i e, se viene dunque assunta una mancata correlazione tra i valori b_{ij} e b_j , possiamo fare le approssimazioni seguenti:

$$\langle b_i b_j \rangle = \langle b_i \rangle \langle b_j \rangle = \langle b \rangle^2 \quad \text{caso } i \neq j \quad (1.21)$$

$$\langle b_i b_j \rangle = \langle b_i^2 \rangle = \langle b^2 \rangle \quad \text{caso } i = j \quad (1.22)$$

Inserendo tali valori nell'equazione precedente, si ottiene la sezione d'urto doppio differenziale (1.23), generalizzata nel caso il campione sia composto da più elementi distinti, indicati dai coefficienti γ e γ' .

$$\begin{aligned} \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_1} &= \frac{1}{N} \frac{k_1}{k_0} \sum_{\gamma\gamma'} \langle b_{\gamma'}^* \rangle \langle b_{\gamma} \rangle \sum_{i \in \gamma, j \in \gamma'} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(t)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} \rangle e^{-i\omega t} dt \\ &+ \frac{1}{N} \frac{k_1}{k_0} \sum_{\gamma} [\langle b_{\gamma}^2 \rangle - \langle b_{\gamma} \rangle^2] \sum_{i \in \gamma} \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(t)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_i(0)} \rangle e^{-i\omega t} dt \end{aligned} \quad (1.23)$$

Quindi la formula (1.23) può essere ridotta in due fattori: un termine coerente e uno incoerente:

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right) = \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{coh} + \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE}\right)_{inc} \quad (1.24)$$

I termini che esprimono le posizioni relative e le interazioni dinamiche delle componenti del sistema nell'urto vengono espressi tramite il cosiddetto fattore di struttura dinamico $S(\mathbf{Q}, \omega)$.

$$\left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE'}\right)_{coh} = \frac{\sigma_{coh} k_1}{4\pi k_0} S(\vec{Q}, \omega) \quad \text{con } S(\vec{Q}, \omega) \text{ fattore di struttura coerente} \quad (1.25)$$

$$\left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE'}\right)_{inc} = \frac{\sigma_{inc} k_1}{4\pi k_0} S_{inc}(\vec{Q}, \omega) \quad \text{con } S_{inc}(\vec{Q}, \omega) \text{ fattore di struttura incoerente} \quad (1.26)$$

Tale fattore, seguendo le considerazioni fatte da Van Hove, può essere espresso come funzione di una distribuzione radiale dipendente dal tempo $G(r,t)$ per i sistemi che seguono l'approssimazione di Born:

$$S(\vec{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int G(\vec{r}, t) e^{i(\vec{Q}\cdot\vec{r} - \omega t)} d\vec{r} dt \quad (1.27)$$

Da un punto di vista classico, $G(r,t)$ rappresenta la probabilità che un atomo, posto nell'origine del sistema di riferimento ($r_0=0$) in un tempo iniziale $t_0=0$, possa essere trovato in posizione r nell'istante t .

Dalle formule (1.25), (1.26) e (1.27) risulta chiaro che la sezione d'urto doppio differenziale di scattering coerente rappresenti una correlazione nel tempo tra le posizioni di nuclei distinti del campione. Questo tipo di scattering è legato all'interferenza tra le onde prodotte dalla diffusione dei singoli neutroni da parte dei nuclei. Proprio per questo motivo in alcuni testi viene definito come "termine di interferenza". [4]

Il termine incoerente, d'altro canto, esprime la correlazione nel tempo della posizione di uno stesso atomo. Poiché le onde diffuse da atomi diversi non creano interferenza in modo costruttivo, la diffusione incoerente è del tutto casuale. Nella maggioranza dei casi sperimentali l'intensità dello scattering incoerente è isotropica e non dipende dall'angolo di diffusione. L'unico contributo che viene dato da questo termine risulta essere un background omogeneo nel segnale acquisito, un valore costante ad ogni angolo di diffusione.

Quando lo spin di un nucleo è tale per cui b ha un solo valore si ha $\langle b_\gamma^2 \rangle = \langle b_\gamma \rangle^2$, cioè la sezione d'urto doppio differenziale del termine incoerente si annulla e si ha solo il termine coerente.

In funzione delle considerazioni fatte, nel caso dell'approssimazione statica ($k_1 = k_0$) [3] si può scrivere la relazione seguente:

$$\frac{1}{N} \left[\frac{d\sigma}{d\Omega}(Q) \right] = (\bar{b})^2 S(Q) + [\overline{b^2} - (\bar{b})^2] = b_{coh}^2 S(Q) + b_{inc}^2 \quad (1.28)$$

Il termine $S(Q)$ viene espresso in funzione del fattore di struttura dinamico e, tramite la relazione (1.27), si ricava la sua dipendenza dalla distribuzione radiale $g(r)$ tramite la trasformata di Fourier:

$$S(\vec{Q}) = \int_{-\infty}^{+\infty} S(\vec{Q}, \omega) d(\hbar\omega) = 1 + \int g(r) e^{i\vec{Q}\cdot\vec{r}} d\vec{r} \quad (1.29)$$

che dipende dal numero medio di particelle contenute in un guscio sferico dr centrato nel nucleo posizionato nell'origine del sdr, con $\rho = N/V$ densità di particelle nel volume considerato:

$$\langle n(r) \rangle = g(r) \rho 4\pi r^2 dr \quad (1.30)$$

In figura (1.8) sono mostrati gli andamenti di $g(r)$ e la sua trasformata $S(Q)$: da notare la repulsione atomica per $r \rightarrow 0$ e un comportamento oscillante che tende a 0 per $r \rightarrow \infty$.

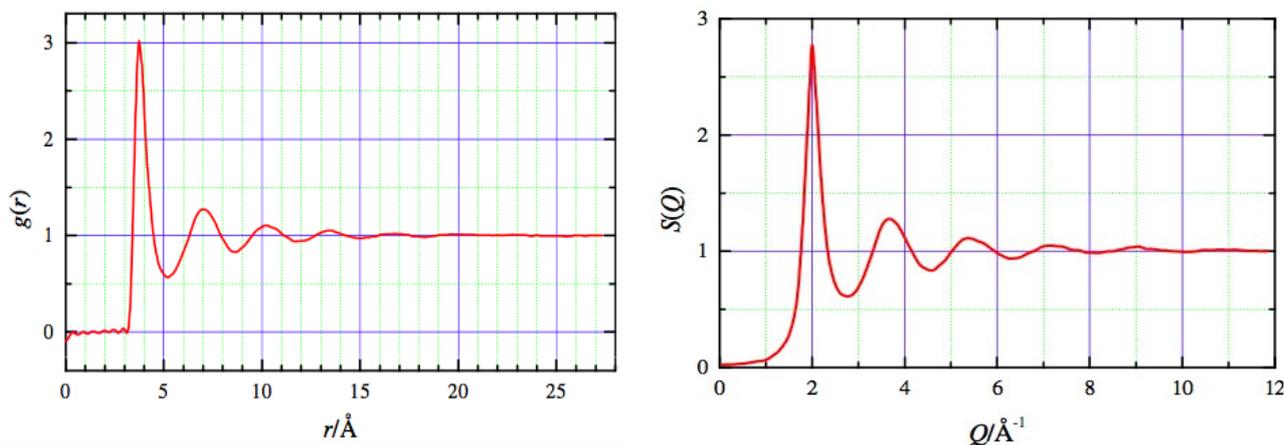


Fig. 1.6: coppia della trasformata di Fourier $g(r)$ e di $S(Q)$.

Generalmente, se in un esperimento di diffusione non viene fatta un'analisi in energia, si può ricavare la sezione d'urto differenziale in funzione del vettore d'onda scambiato \mathbf{Q} . La relazione che lega queste due grandezze può essere espressa in un grafico che mostra dei picchi di intensità per determinati valori di \mathbf{Q} . Visivamente, i vari termini della (1.28), a meno di un fattore 4π , possono essere interpretati nel grafico nel modo seguente (Fig. 1.7):

- $\langle b^2 \rangle$ indica la sezione media totale con cui avviene l'interazione tra il neutrone incidente e l'atomo del campione su cui questo viene diffuso;
- $\langle b \rangle^2$ indica la componente della sezione media totale dell'interazione dovuta al comportamento medio dei neutroni durante la diffusione;
- $\langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2$ indica la componente della sezione media totale dell'interazione dovuta alla media comportamentale specifica dei neutroni nella diffusione casuale di un singolo neutrone, dovuta alle caratteristiche del materiale diffusore. Tale fenomeno viene comunemente definito *background di fondo*;
- $\langle b \rangle^2 S(\mathbf{Q})$ indica la componente della sezione d'urto differenziale legata al fattore di struttura dinamico coerente, cioè al termine di interferenza dei neutroni dovuto al campione;
- $\langle b \rangle^2 S(\mathbf{0})$ indica il termine di interferenza quando la diffusione non avviene.

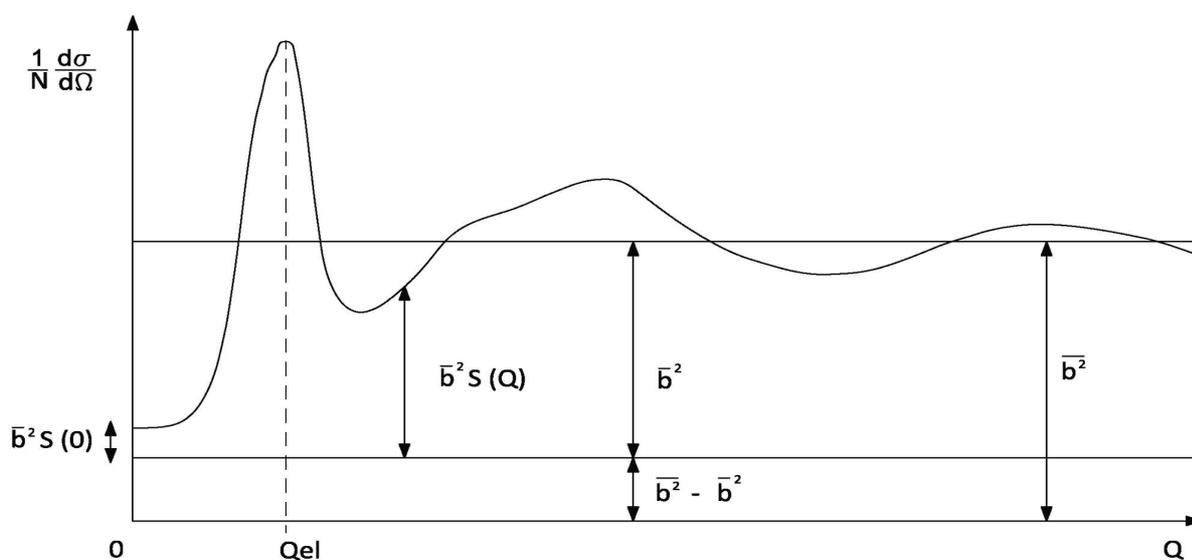


Fig. 1.7: rappresentazione della sezione d'urto differenziale in funzione del vettore d'onda \mathbf{Q} .

1.4 – Tecniche spettroscopiche

La cinematica dello scattering di neutroni, rappresentata in Fig. 1.8, permette di codificare diversi tipi di interazioni a seconda dell'energia dei neutroni incidenti e diffusi dal campione.

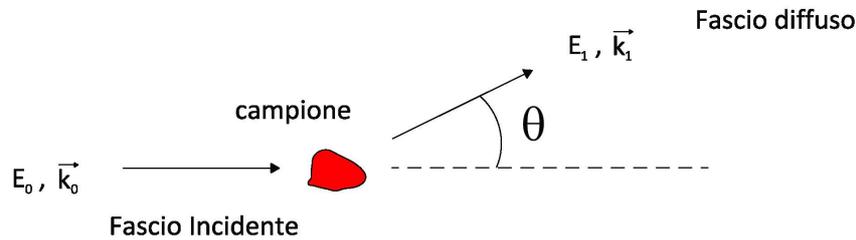


Fig. 1.8: geometria piana di diffusione di un fascio di particelle.

Dalla conservazione della quantità di moto (1.31) e dell'energia (1.32) si ottiene la relazione (1.33):

$$\hbar \vec{k}_0 = \hbar \vec{k}_1 + \hbar \vec{Q} \quad (1.31)$$

$$E = E_0 - E_1 = \frac{\hbar^2}{2m} (k_0^2 - k_1^2) = \hbar \omega \quad (1.32)$$

$$\frac{Q}{k_0} = \sqrt{1 + \left(1 - \frac{E}{E_0}\right) - 2 \cos(2\theta) \sqrt{1 - \frac{E}{E_0}}} \quad (1.33)$$

dove \mathbf{k}_0 e \mathbf{k}_1 sono i vettori d'onda dei neutroni incidenti e diffusi, E_0 e E_1 le relative energie, Q è il vettore d'onda scambiato nell'interazione, θ è l'angolo a cui avviene la diffusione.

L'espressione (1.33) costituisce il cosiddetto *range cinematico*, cioè un insieme di valori del vettore d'onda scambiato che è possibile studiare in un esperimento di diffusione, in funzione dell'energia scambiata E tra neutrone e atomo. L'energia scambiata nell'interazione dipende generalmente dall'energia dei neutroni incidenti e dalle caratteristiche del materiale diffusore.

Il range cinematico può essere rappresentato da un grafico che mette in relazione le grandezze espresse dalla (1.33). Tale grafico è detto piano cinematico, raffigurato in Fig. 1.9. Fissando un'energia dei neutroni incidenti sul bersaglio, si può osservare come, a parità dell'energia scambiata (E), si hanno valori diversi del vettore d'onda Q a seconda dell'angolo di diffusione a cui viene studiato.

A partire dalla condizione di energia scambiata nulla ($E = 0$), aumentando l'energia scambiata nell'interazione si hanno due regioni asimmetriche tra loro, a seconda che l'energia venga ceduta o assorbita dal neutrone incidente. Nel primo caso ($E > 0$) si ha una riduzione dei valori di Q ammessi per un dato angolo θ . Nel secondo caso ($E < 0$) si può osservare un range più ampio dei valori di Q . Dalla (1.33) si dimostra che aumentando l'energia del fascio di neutroni incidente si mappano zone sempre più ampie del piano cinematico, poichè aumenta il range dei valori di Q [2]. Tuttavia, l'energia dei neutroni incidenti non può essere aumentata a dismisura, poichè ciò comporterebbe un peggioramento nella risoluzione in energia raggiungibile dallo strumento, dunque una riduzione netta nella possibilità di osservare eccitazioni con energia e vita media troppo piccole rispetto all'energia incidente.

Poichè i fenomeni analizzati negli esperimenti di fisica dello stato solido sono dell'ordine di 10–100 meV, l'energia del fascio incidente viene selezionata in modo opportuno e nella maggioranza dei casi risulta una distribuzione Gaussiana con valore medio di 25 meV (neutroni termici).

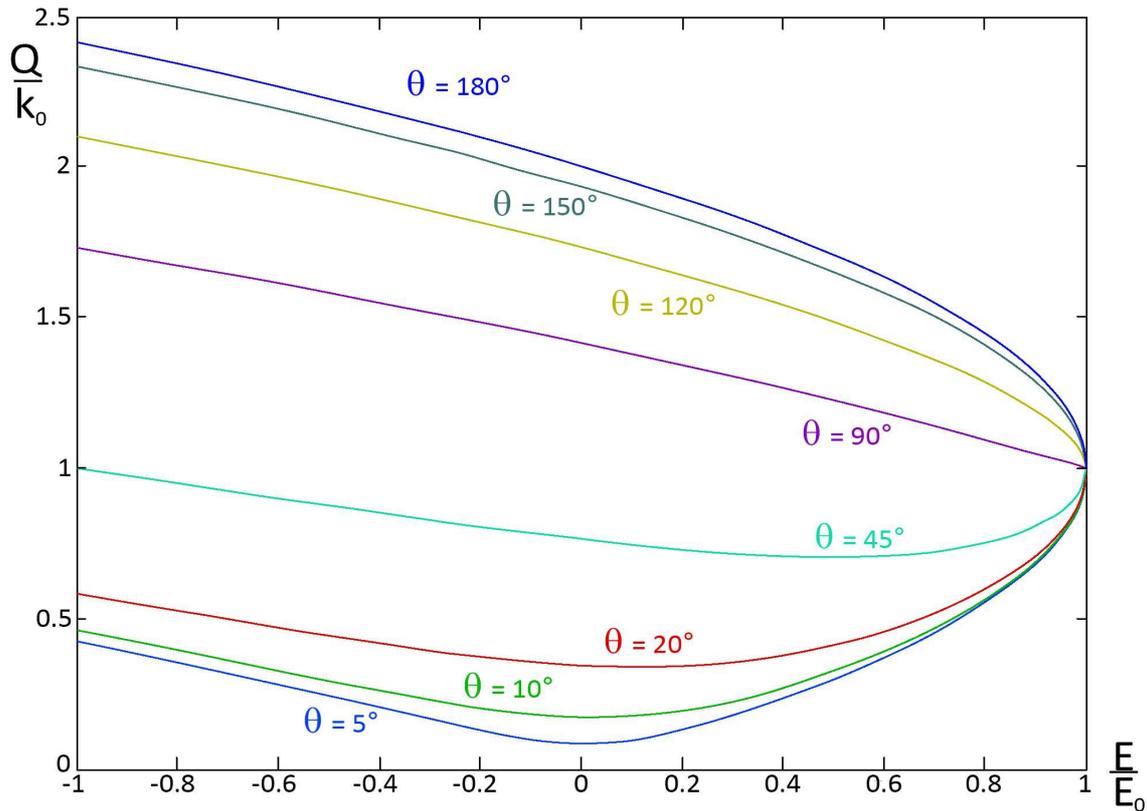


Fig. 1.9: piano cinematico di un esperimento di scattering di neutroni in geometria diretta.

Se gli atomi o le molecole del campione possono acquisire, tramite urto con un neutrone, un'energia complessiva (traslazionale, rotazionale e vibrazionale) molto piccola rispetto all'energia del fascio di neutroni, allora l'energia del neutrone rimane pressoché invariata ($E_0 \approx E_1$) e si parla di scattering elastico.

Lo scattering elastico si ha quindi in situazioni in cui l'energia del neutrone incidente è molto maggiore di quella scambiata con il campione. Da ciò si deduce che il modulo del vettore d'onda incidente è uguale a quello diffuso e si ha una corrispondenza diretta tra quantità di moto scambiata Q , angolo di scattering 2θ e l'energia dei neutroni incidenti:

$$\vec{Q}_{el} = 2k_0 \sin(\vartheta) = \frac{2\pi}{\lambda_0} \sin(\vartheta) \quad (1.34)$$

Questo tipo di interazione segue la legge di Bragg (1.35), che esprime la condizione di interferenza costruttiva tra onde diffuse elasticamente da un cristallo e per questo viene anche chiamata diffrazione. L'utilizzo della diffrazione risulta utile per determinare la struttura atomica e/o magnetica del campione tramite un figura di interferenza.

$$n\lambda = 2d \sin(\vartheta) \quad (1.35)$$

Considerando una lunghezza d'onda fissata del fascio incidente, si può osservare un fenomeno di interferenza costruttiva dovuto alla distanza d tra due piani atomici, che crea una differenza di cammino multipla di $2d \sin\theta$ solo se l'angolo di incidenza rispetta la legge di Bragg, come raffigurato in Fig. 1.10.

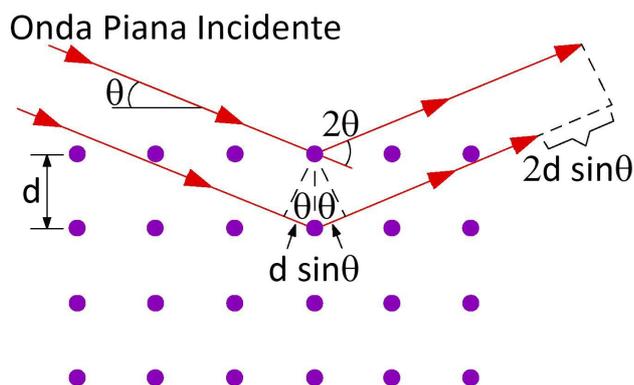


Fig. 1.10: differenza di cammino dovuta alla diffrazione.

In base alla struttura del campione, se il vettore d'onda Q_{el} scambiato assume valori *in risonanza* con quelli caratteristici della struttura, si possono osservare, a determinati angoli, dei picchi corrispondenti ai massimi di intensità. Combinando la (1.34) con la (1.35) otteniamo la seguente:

$$\vec{Q}_{el\ peak} = n \frac{2\pi}{d} \vec{n} = \vec{k}_0 - \vec{k}_1 \quad (1.36)$$

dove \vec{n} è il versore normale alla famiglia di piani reticolari con distanza d definita, mentre n è un numero intero che indica l'ordine del piano su cui avviene la riflessione.

Gli strumenti principali per tale tipo di indagine (per alti valori di Q) sono i diffrattometri a 2 assi, usati con reattori nucleari, e diffrattometri a tempo di volo, usati con sorgenti pulsate e continue. Entrambi gli strumenti servono per studiare la struttura dei monocristalli e delle polveri cristalline. A valori bassi di Q vengono invece usati i riflettometri, che permettono di studiare le riflessioni da polimeri, strutture magnetiche di pellicole, membrane di sistemi biologici e altri agglomerati chimici su scala cellulare. Un'altra classe di macchine usate su scala cellulare sono gli strumenti SANS (Small Angle Neutron Spectroscopy), che spesso sfruttano la grande differenza tra lunghezze di scattering dell'idrogeno e del deuterio per lo studio dei sistemi biologici.

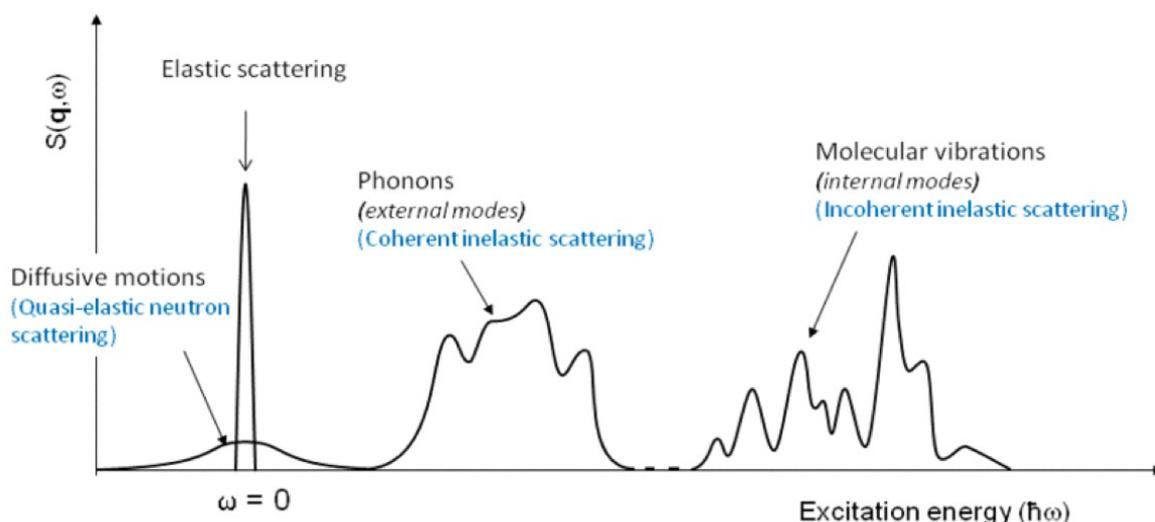


Fig. 1.11: tipi di eccitazioni possibili in un esperimento di diffusione anelastica su un cristallo molecolare. Immagine da: mlz-garching.

Se invece il neutrone scambia energia con il campione si parla propriamente di scattering anelastico o quasi-elastico.

Lo spettroscopia anelastica viene generalmente usata negli esperimenti di fisica della materia condensata; in particolare è utile per lo studio delle vibrazioni degli atomi e delle molecole, dei modi dinamici reticolari, così come delle eccitazioni magnetiche cristalline (Fig. 1.11).

Gli strumenti maggiormente usati per questo tipo di studio prevedono l'uso di un monocromatore per la selezione delle energie delle particelle, e le misure in energia possono essere rivelate da un diffrattometro a triplo-asse (TAS) o da un diffrattometro a tempo di volo (TOF). Entrambi gli strumenti sono utili per lo studio delle curve di dispersione dei modi normali, cioè dei modi acustici e ottici del campione in esame.

Una tecnica di spettroscopia quasi-elastica è il backscattering che risulta utile per lo studio delle vibrazioni su scale del nanosecondo, con una risoluzione in energia di qualche μeV ed energia scambiata nell'interazione pressoché nulla.

Un altro spettrometro usato negli esperimenti di diffusione quasi-elastica è lo spin-echo (NSE). Grazie a una risoluzione strumentale molto elevata e all'utilizzo di neutroni incidenti polarizzati, lo strumento misura le variazioni di orientazione dello spin del neutrone prima e dopo l'interazione. Questo permette di ricavare informazioni sui modi di rilassamento e processi diffusivi tipici nei materiali come miscugli di polimeri, catene alcaline e microemulsioni.

Si osservi come le tecniche neutroniche abbiano un range molto ampio nello studio della materia condensata e come, tramite l'uso combinato di diverse tecniche, si riesca a indagare una vasta categoria di fenomeni fisici (Fig. 1.12). Anche i campi di applicazione risultano molto vasti: dalla biologia alle nanotecnologie, dalla chimica al restauro dei beni culturali [5].

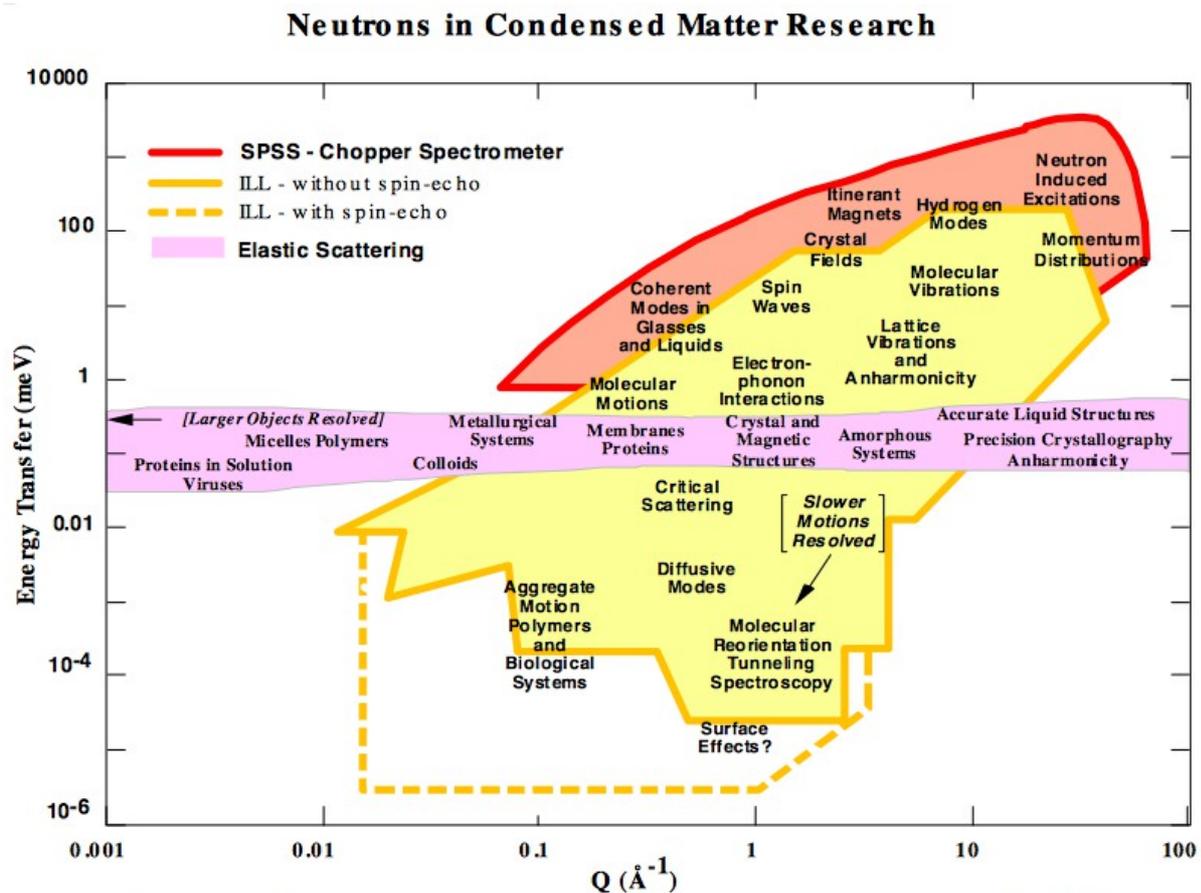


Fig. 1.12: campi di applicazione delle varie tecniche spettroscopiche e loro range energetico in funzione del vettore d'onda scambiato Q presso l'Institut Laue-Langevin (Grenoble, Francia).

Da notare come le varie tecniche spettroscopiche neutroniche siano complementari a tecniche più diffuse e come un utilizzo misto di queste risulti molto utile per avere un quadro d'insieme completo nello studio della materia (Fig. 1.13).

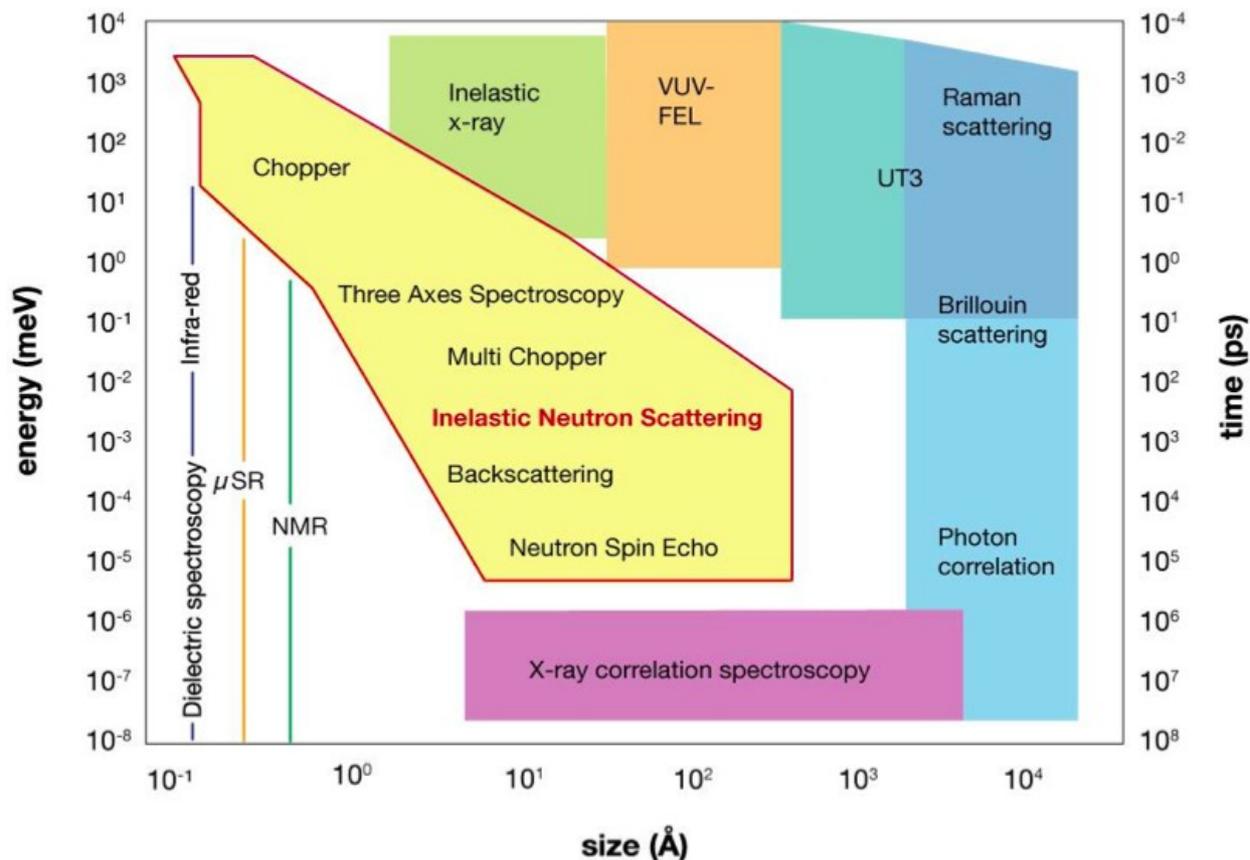


Fig. 1.13: dominio di lunghezze e tempi accessibile tramite le tecniche di diffusione di neutroni comparato con quello degli altri metodi di indagine spettroscopica. Immagine da: mlz-garching.de

Capitolo 2

Sorgenti di neutroni

2.1 – Reattori nucleari

I reattori nucleari sono delle macchine che sfruttano l'energia di legame dei nucleoni di un atomo per produrre energia e/o particelle. Esistono due tipi di reazioni nucleari: la fissione e la fusione. In entrambi i casi si utilizzano le proprietà della forza forte, in particolare il fatto che all'aumentare della stabilità di un nucleo aumenti l'energia di legame nucleare E_B necessaria per spezzare il legame che tiene uniti i nucleoni di un atomo. Secondo il modello del nucleo a goccia, tale energia dipende dal numero di nucleoni A costituenti l'atomo e ha un andamento espresso dalla formula semi-empirica di Weizsäcker (2.1), la cui dimostrazione è rimandata ad altri testi [1].

$$E_B = a_V A - a_S A^{2/3} - a_C \frac{Z(Z-1)}{A^{1/3}} - a_A \frac{(A-2Z)^2}{A} - a_P \frac{\delta}{A^{3/4}} \quad (2.1)$$

La formula (2.1) rappresenta una curva che approssima in modo soddisfacente le misure sperimentali rappresentate in figura 2.1. Come si può notare, il rapporto E_B/A assume rapidamente un valore compreso tra 8 – 9 MeV. Alcuni elementi, come ${}^4\text{He}$, ${}^{12}\text{C}$, ${}^{16}\text{O}$, hanno un'energia di legame elevata rispetto agli atomi immediatamente adiacenti e per questo risultano particolarmente stabili a temperatura ambiente. L'elemento più stabile in natura è il ferro ${}^{56}\text{Fe}$. Questo isotopo separa gli elementi in due categorie sommarie, con proprietà comportamentali ben distinte: gli elementi *pesanti* alla sua destra e gli elementi *leggeri* alla sinistra.

Gli elementi più pesanti tendono ad aumentare l'energia di legame nucleare frazionandosi in atomi più leggeri tramite la reazione esoenergetica definita come fissione nucleare. Gli atomi più leggeri conseguono maggiore stabilità tramite la fusione dei loro nuclei, da cui il termine fusione nucleare. Sperimentalmente, la somma delle masse di N atomi nello stato libero è sempre maggiore della massa del loro stato legato. La differenza Δm tra la massa degli atomi in stato legato (M_{TOT}) e la somma delle masse dei singoli atomi (m_i) è definita *difetto di massa*:

$$\Delta m = \sum_i^N m_i - M_{TOT} \quad (2.2)$$

Tale difetto di massa è proporzionale all'energia liberata nella reazione nucleare secondo la relazione $E = \Delta mc^2$, equazione relativistica dell'energia a riposo, enunciata da Albert Einstein nel 1905. Entrambe le reazioni nucleari sfruttano il fenomeno del difetto di massa per la produzione di energia o particelle, ma le modalità di attivazione della reazione sono diverse e dipendono dal tipo di reattore usato.

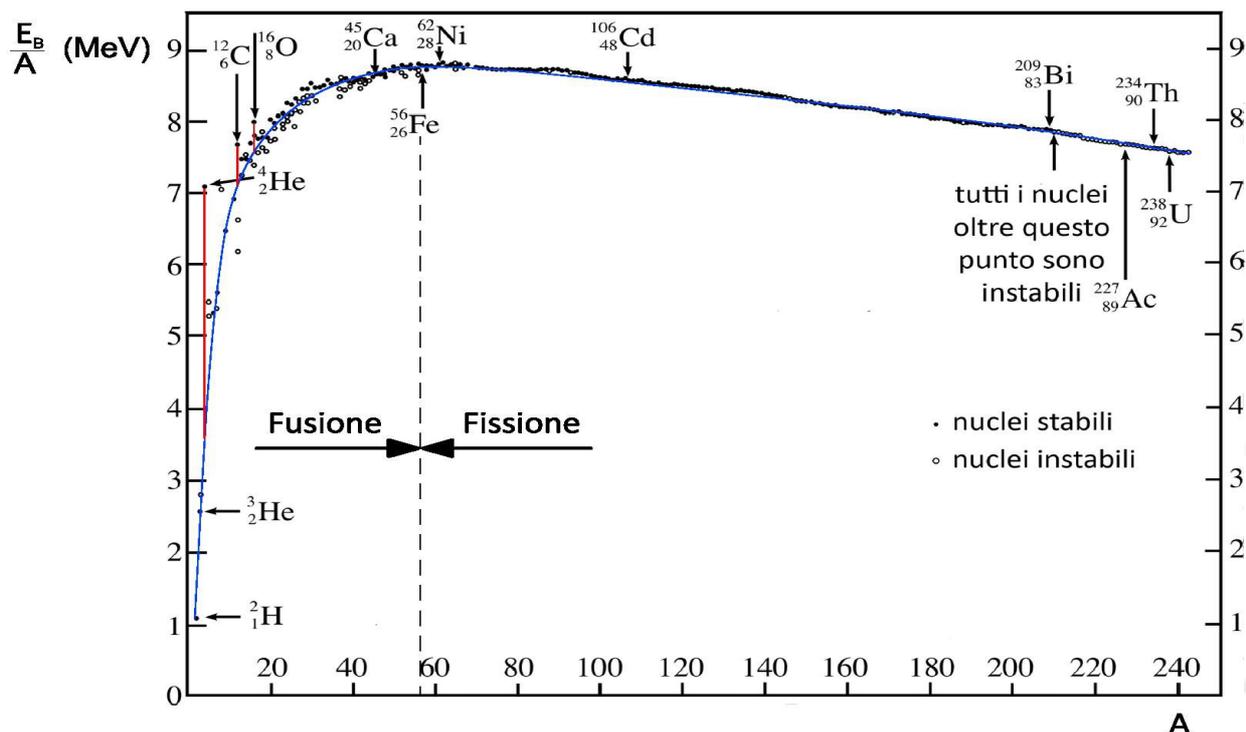


Fig. 2.1: energia di legame nucleare per nucleone al variare del numero di massa atomica A . Dati aggiornati su: www.oecd-nea.org.

Esistono due categorie di reattori a fissione nucleare:

- reattori di potenza, che vengono usati per la produzione di energia termica, poi convertita in quella elettrica;
- i reattori sperimentali, che hanno il fine di produrre particelle necessarie per la ricerca scientifica.

In entrambi i casi il processo può essere descritto in modo simile per cui la trattazione sarà unica. Il materiale fissile più usato dai reattori è l'uranio ^{235}U su cui viene inviato un fascio di neutroni termici per attivarne la reazione. Un atomo di uranio che assorbe il neutrone diventa instabile e decade in atomi più leggeri liberando in media 3 neutroni veloci, energia sotto forma di raggi gamma e particelle residue della fissione. (Fig. 2.2)

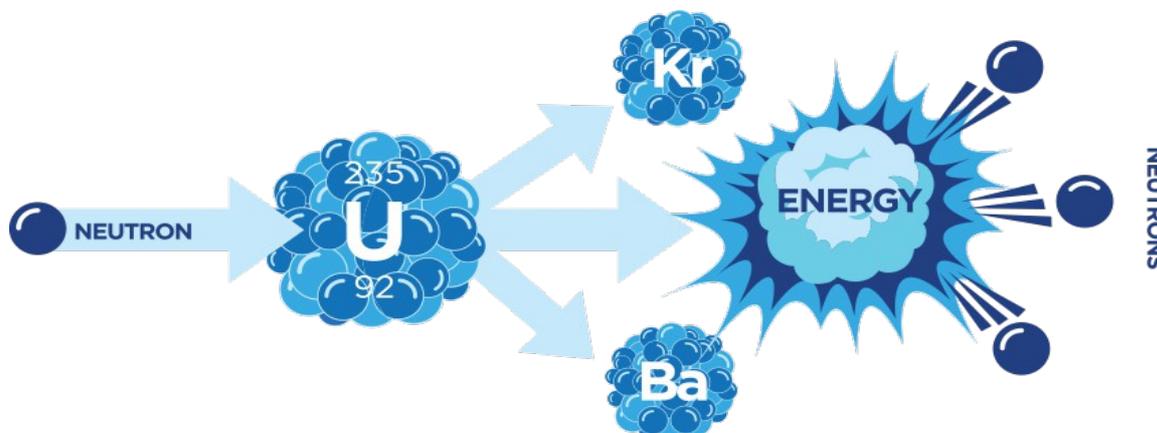


Fig. 2.2: processo di fissione nucleare dell'uranio ^{235}U per la produzione di neutroni. Immagine da NTI Nuclear Security Index (ntiindex.org)

Un reattore nucleare è composto da diverse strutture che sfruttano i prodotti della reazione, situate attorno a una camera centrale larga circa 3 metri, detta nucleo, in cui avviene la fissione vera e propria. Al centro del nucleo viene inserito il materiale fissile circondato da un moderatore, che serve a termalizzare i neutroni prodotti, cioè a diminuirne l'energia cinetica, e a riusarli per mantenere attiva la reazione. Gli atomi prodotti dalla fissione rallentano nel combustibile stesso rilasciando una quantità elevata di energia sotto forma di calore. Il calore così prodotto è pericoloso per il nucleo in quanto ad alte temperature si può perdere il controllo della reazione e raggiungere una fase critica del combustibile, denominata fusione del nocciolo. Questo fenomeno innesca un processo incontrollato in cui, a causa delle temperature elevatissime, si raggiunge un cedimento strutturale degli strati del nucleo del reattore, e quelli ad esso adiacenti, che comporta il collasso dello stesso, con conseguenze gravissime per la sicurezza pubblica e l'ambiente naturale. Per asportare questo calore viene usato un fluido refrigerante termovettore posto tra il moderatore e lo strato più esterno; alcune volte può coincidere con il moderatore stesso. Inoltre, vicino alle celle di materiale fissile vengono inserite delle barre metalliche dette barre di controllo, che possono essere frapposte tra le celle e assorbire i neutroni prodotti in eccesso per rallentare, o eventualmente arrestare, il processo di fissione. La parte più esterna del nucleo è costituita da uno strato spesso di metallo (generalmente acciaio), detto schermo biologico, che assorbe i residui nocivi della reazione, quali i raggi gamma (Fig. 2.3).

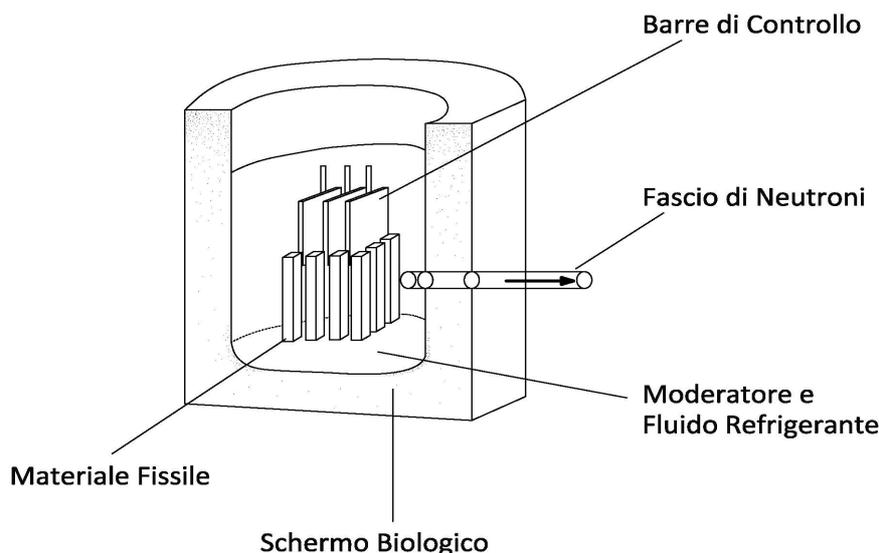


Fig. 2.3: *Struttura interna di un reattore nucleare a fissione.*

I reattori nucleari che vengono usati per la produzione dei neutroni a scopo scientifico dispongono di tubi per il trasporto delle particelle dal reattore ai macchinari che li utilizzano (Fig. 2.4). Questi tubi possono essere disposti in modo radiale o tangenziale rispetto al nucleo; la loro posizione incide sulle proprietà del fascio stesso nel modo seguente:

- I tubi radiali garantiscono un maggiore flusso neutronico, ma anche una consistente quantità di raggi γ che interferisce con la strumentazione per la rivelazione dei neutroni stessi;
- I tubi tangenziali riducono considerevolmente l'affluenza dei raggi γ al costo di una riduzione in termini di flusso di neutroni.

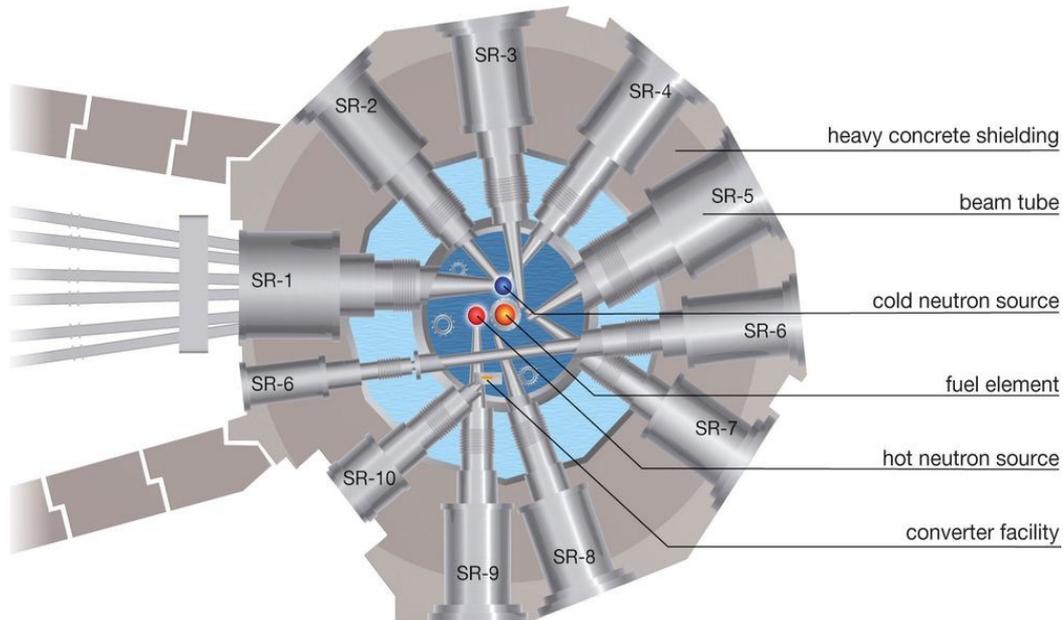


Fig. 2.4: sezione del reattore FRM II del Technische Universität München (TUM) presso il centro di ricerca Heinz Maier-Leibnitz di Monaco.

Per far convergere i neutroni nei diversi tubi, vengono usate delle superfici riflettenti e diaframmi posti a breve distanza dal materiale fissile stesso. Nel tratto iniziale di ogni tubo sono posti degli appositi collimatori, dispositivi in grado di massimizzare il flusso del fascio riducendone la divergenza ed aumentando in tal modo la risoluzione degli strumenti che usano questi neutroni. Il flusso collimato viene inviato fino alle macchine tramite delle guide di trasporto la cui sezione è di circa 25 cm^2 , che sfruttano il fenomeno della riflessione totale da una superficie lucida per mantenere i neutroni termici al proprio interno. Si dimostra (nota) che l'indice di rifrazione n del neutrone dipende dalla densità di lunghezza di scattering Nb tramite la lunghezza d'onda al quadrato (2.3), espressione che permette di determinare il materiale più opportuno affinché avvenga la riflessione. Tramite la legge di Snell (2.4) viene determinato l'indice di rifrazione del materiale affinché un neutrone con lunghezza d'onda superiore ad un certo valore λ^* sia riflesso nella guida. Nella formula (2.4) sono riportati due angoli: α_1 è dato tra la direzione del fascio incidente e il piano di diffusione, α_2 tra il piano e la direzione del fascio diffuso, nel punto dell'interazione. Generalmente, per le guide viene usato il nichel ^{58}Ni , il migliore materiale riflettente per i neutroni.

$$n^2 = 1 - \lambda^2 \frac{Nb}{\pi} \quad (2.3)$$

$$n \cos(\alpha_{\text{incidente}}) = \cos(\alpha_{\text{riflesso}}) \quad (2.4)$$

Il vantaggio primario di queste guide è la possibilità di trasporto del fascio fino a distanze molto lunghe, che possono raggiungere anche centinaia di metri. Una maggiore distanza aumenta la possibilità di disporre più strumenti lungo le guide e diminuisce la presenza di neutroni veloci e di fotoni da cui è contaminato il fascio: usando delle guide di lunghezza 1 metro e disponendole in successione in modo da approssimare un arco di cerchio, è possibile incurvare il fascio in modo che le guide riflettano al proprio interno solo i neutroni termici, mentre i neutroni di energia superiore e i raggi γ escano dalle guide e non raggiungano gli strumenti.

I reattori nucleari a fusione sono utilizzabili solamente a scopo di ricerca, in quanto attualmente non vi sono le condizioni per mantenere una reazione di fusione prolungata nel tempo e la stessa risulta essere una tecnica dispendiosa dal punto di vista energetico ed economico. Infatti, per attivare la

reazione sono necessarie temperature talmente elevate (almeno 10^8 K) che nessun materiale esistente riesce a contenere i materiali della reazione senza subire danni strutturali. Le tecniche più usate per il confinamento del plasma di fusione sono principalmente due:

- Confinamento magnetico, che consiste nell'uso di forti campi magnetici per imprigionare il plasma, disponendolo il più delle volte in una configurazione di geometria toroidale nota come Tokamak;
- Confinamento inerziale, che utilizza raggi laser focalizzati per evitare la dispersione del materiale nel processo di fusione.

I due elementi più usati per tali studi sono il deuterio (^2H) e il trizio (^3H) che, reagendo a una soglia di energia relativamente bassa (~ 50 KeV per reazione), producono un atomo di elio e un neutrone, oltre a una quantità enorme di energia (17.6 MeV per ogni reazione). La relazione che esprime la fusione è la seguente:



In generale, il bilancio energetico totale è sfavorevole per la fusione, tale che, nel migliore dei casi, si osserva un aumento dell'energia prodotta pari all'uno percento dell'energia investita. Inoltre le sessioni di fusione più durature sono dell'ordine di pochi minuti, per cui questo processo non può che essere inefficiente per la produzione di un flusso costante di neutroni e per la ricerca scientifica si preferisce usare il metodo della fissione nucleare.

2.2 – Institut Laue-Langevin

L'Institut Laue-Langevin (ILL) è una struttura privata che mette a disposizione i neutroni per la ricerca scientifica ed è situata nella cittadina Francese di Grenoble (Fig. 2.5). La struttura è stata fondata nel 1967 grazie un accordo di cooperazione scientifica tra la Francia, la Germania e il Regno Unito, a cui si è aggiunta successivamente la collaborazione di altri paesi, compresa l'Italia. L'Istituto è situato in uno dei principali centri europei di ricerca scientifica denominato European Proton–Neutron Science Campus (EPN), che racchiude diverse strutture di ricerca tra cui European Synchrotron Radiation Facility (ESRF), European Molecular Biology Laboratory (EMBL) e Unit for Viral Host Cell Interactions (UVHCI).



Fig. 2.5: veduta dell'Institute Laue-Langevin, Grenoble. (Fonte: wikipedia)

L'Istituto dispone di un reattore a fissione nucleare che produce un flusso continuo di neutroni nella regione termica più intenso al mondo: 1.5×10^{15} neutroni per cm^2 , con una potenza termica di 58.3 MW. Il reattore opera in modo continuo per un ciclo di 50 giorni, al termine del quale viene arrestato per la manutenzione e la sostituzione del materiale fissile. Normalmente ci sono 4 cicli per anno che offrono complessivamente 200 giorni totali di ricerca scientifica.

Le principali specifiche tecniche del reattore sono illustrate in Fig. 2.6.

Thermal power	58.3 MW
Max. unperturbed thermal flux in the reflector	1.5×10^{15} neutrons $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
Max. perturbed thermal flux at the beam tubes	1.2×10^{15} neutrons $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
Coolant flow in fuel element	2400 m^3/h
Coolant velocity	17 m/s
Coolant pressure (outlet)	4 bar
Coolant temperature (outlet)	50 °C
Reactor cycle	50 days
Average consumption of ^{235}U	36 %

Fig. 2.6: principali caratteristiche del reattore dell'Institute Laue-Langevin. Immagine dal sito ill.eu.

I neutroni termici prodotti hanno una lunghezza d'onda di 1.2 Angstrom e sono termalizzati da una piscina di acqua pesante alla temperatura di 300 K.

Il nucleo del reattore dispone di una sorgente calda con un moderatore di 10 litri di grafite alla temperatura di 2400 K, che produce neutroni di lunghezza d'onda inferiore a 0.8 Angstrom.

Accanto ad essa è situata una sorgente di neutroni freddi orizzontale con un moderatore di 6 litri di deuterio alla temperatura di 25 K, con un flusso prodotto pari a 8×10^{14} neutroni per cm^2 al secondo. E' presente anche una sorgente fredda verticale con un moderatore di 20 litri di deuterio a 25 K che produce 4.5×10^{14} neutroni per cm^2 al secondo, con lunghezze d'onda di circa 3 Angstrom.

Attualmente la struttura dispone di 54 strumenti disposti in due sale laterali e una centrale, che contiene il reattore stesso. Dal nucleo partono 13 canali orizzontali e 4 canali inclinati che collegano alcuni strumenti più vicini ad esso e alcuni disposti nelle sale laterali. Gli strumenti più distanti sono disposti lungo 8 guide per i neutroni freddi, 5 guide per i neutroni termici e una guida verticale per i neutroni molto freddi (Fig. 2.7).

La struttura offre un'ampia varietà di strumenti tra cui:

- Diffrattometri da polveri: D2B, D20, D18, D4, SALSA;
- Diffrattometri da singolo cristallo: CYCLOPS, D3, D9, D10, D19, D23, OrientExpress;
- Diffrattometri per strutture di larga scala: D11, D16, D22, D33, LADI-III;
- Riflettometri: SuperADAM, D17, FIGARO;
- Spettrometri a tempo di volo: IN4C, IN5, IN6, D7, BRISP;
- Spettrometri ad alta risoluzione: IN10, IN11, IN13, IN15, IN16B;
- Spettrometri a triplo asse: IN1, IN3, IN8, IN12, IN20, IN22, ThALES;
- Strumentazione NPP: PF18, PF2, PN1, PN3, S18, GRANIT, SUN e diversi altri.

L'utilizzo di questa strumentazione è consentito a tutti i gruppi di ricerca indipendenti se la motivazione presentata, valutata da una apposita commissione del centro di ricerca, risulta fondata e l'uso dello strumento richiesto necessario. La macchina viene così prenotata per il cosiddetto *beam time*, un lasso di tempo limitato in cui il gruppo di ricerca dispone di uno specifico strumento per le proprie misurazioni, al termine del quale viene ceduta al gruppo successivo.

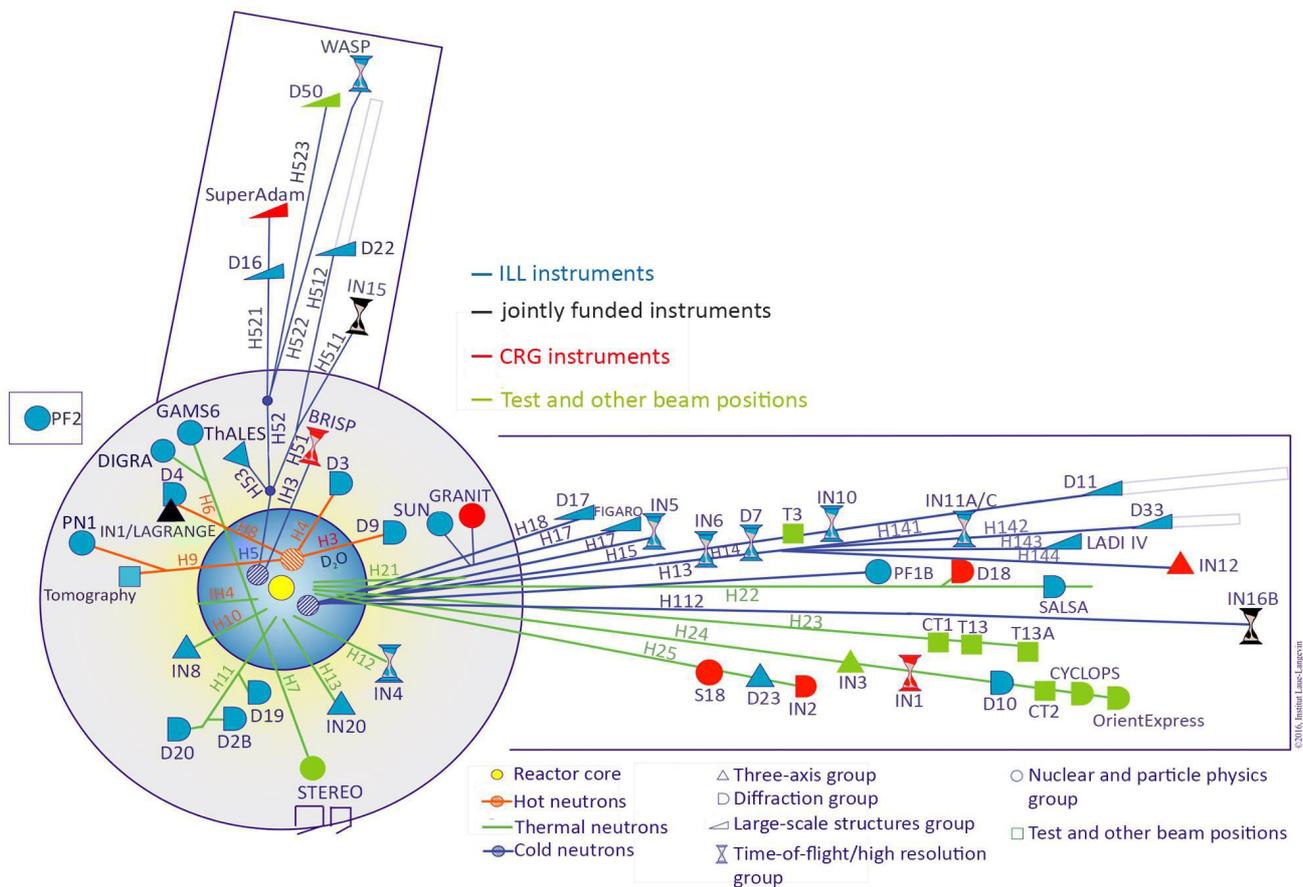


Fig. 2.7: schema delle guide di neutroni e della disposizione strumentale all'interno dell'Institut Laue-Langevin. Immagine dal sito ill.eu.

2.3 – Sorgenti a spallazione

La spallazione (dall'inglese *to spall* – scheggiare, sbriciolare) è un processo nel quale un atomo pesante viene investito da una particella ad alta energia che provoca l'emissione di nucleoni e la conseguente riduzione di massa dell'atomo di partenza. Nella maggioranza dei casi, la particella che attiva tale processo è il protone, che viene prodotto mediante due fasi distinte (Fig. 2.8):

- Ioni H^+ vengono accelerati tramite un acceleratore lineare (Linac) e fatti impattare su delle lamine sottili d'oro o di alluminio, che rimuovono gli elettroni da H^+ . Il fascio di protoni a media energia così ottenuto viene inviato al sincrotrone, un apposito acceleratore circolare;
- Nel sincrotrone, l'energia del fascio viene aumentata fino ad avere energia sufficiente per attivare il processo di spallazione all'impatto. Il flusso di protoni viene deviato ad impulsi su un bersaglio di metallo pesante, di solito il tantalio o l'uranio, in una regione moderata da idrogeno o metano liquido.

Il metallo pesante distrutto nel processo produce solitamente 20/30 neutroni caldi per ogni impatto, oltre ad atomi residui più leggeri, energia termica e fermioni altamente energetici.

I neutroni moderati vengono raccolti ed inviati agli strumenti secondo una metodologia del tutto analoga a quella spiegata nel paragrafo precedente.

I neutroni delle sorgenti pulsate sono prodotti in modo discontinuo da impulsi la cui frequenza è di solito di 50 Hz. Il risultato che si ottiene con protoni accelerati da un sincrotrone di 0.8 GeV è una corrente di protoni di $200\mu A$ che riesce a produrre un flusso di 2.5×10^{16} neutroni al secondo.

Questi neutroni vengono poi convogliati nelle guide di trasporto tramite la diffrazione da cristallo, con dispersione minima.

Il bilancio energetico totale è paragonabile a quello della fissione nucleare per cui l'una non risulta più vantaggiosa dell'altra. Ciononostante il progetto European Spallation Source (ESS) ha avuto i permessi per la costruzione di un centro di ricerca con fonte pulsata di neutroni tramite spallazione presso Lund, in Svezia. Il progetto ambisce alla creazione di un nuovo centro di ricerca con la sorgente più potente al mondo che permetta lo studio della materia su scale di lunghezza e di tempo molto piccole, inaccessibili da altre strutture. Il primo lancio di neutroni è previsto per il 2019 mentre l'apertura alle equipe di ricerca sarà posticipata al 2023.

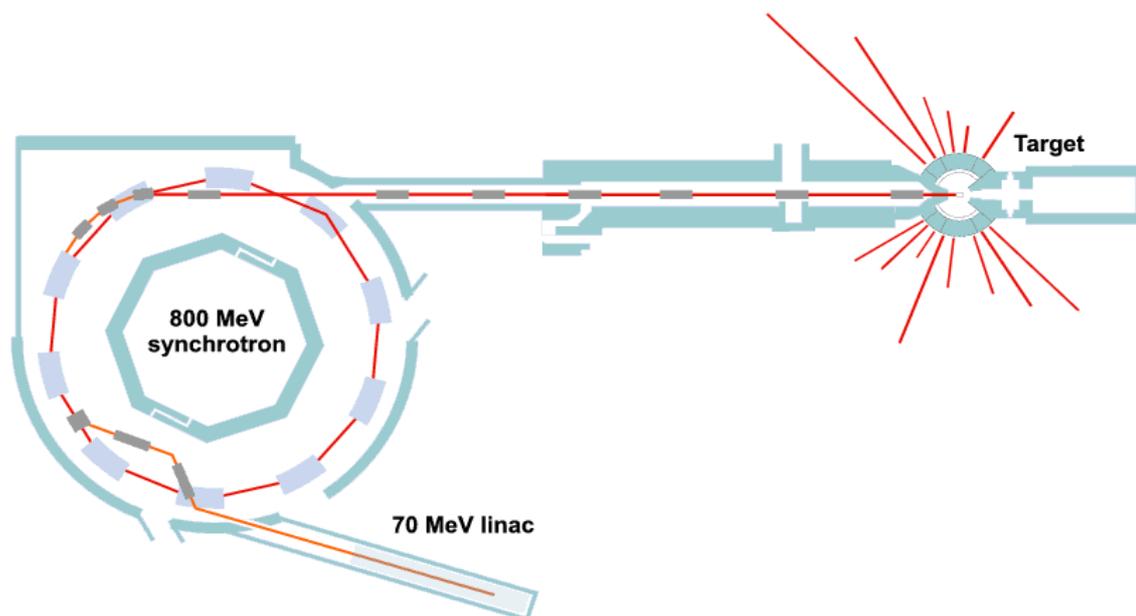


Fig. 2.8: schema della sorgente ISIS presso il Rutherford Appleton Laboratory al centro di ricerca Harwell Science and Innovation Campus in Oxfordshire, Inghilterra. L'immagine è disponibile sul sito pd.chem.ucl.ac.uk.

Capitolo 3

Diffusione anelastica di neutroni mediante diffrattometri a triplo-asse.

3.1 – Struttura cristallina

Per comprendere l'importanza della diffusione anelastica nella fisica dello stato solido bisogna capire la struttura microscopica di un cristallo e le vibrazioni reticolari a cui è soggetto. La scienza che studia la struttura microscopica dei solidi e la disposizione degli atomi al loro interno è la Cristallografia. Viene definito *cristallo* un oggetto solido tridimensionale con una struttura atomica ordinata che si ripete in modo regolare per tutto il solido. Tale struttura costituisce un reticolo cristallino, cioè un insieme di punti rappresentanti le posizioni degli atomi nel solido. Poiché nella maggioranza dei casi le dimensioni dei cristalli sono di molti ordini di grandezza superiori alla distanza interatomica, il reticolo cristallino può essere approssimato a un insieme infinito di punti che viene definito reticolo di Bravais. Scelto un punto del reticolo tridimensionale come origine del sistema di riferimento, ogni punto può essere rappresentato da un vettore:

$$\vec{R} = n_1 \vec{a}_1 + n_2 \vec{a}_2 + n_3 \vec{a}_3 \quad (3.1)$$

dove gli n sono numeri interi e i vettori \mathbf{a} sono detti vettori primitivi, cioè 3 vettori linearmente indipendenti che permettono di generare tutto il reticolo di Bravais. I moduli di tali vettori sono detti parametri spaziali del reticolo e stabiliscono la geometria basilare del reticolo stesso attraverso la definizione delle dimensioni di una cella elementare (Fig. 3.1). Tale cella rappresenta un volume di spazio che conserva la geometria del reticolo e si ripete per tutta l'estensione del solido, riempiendolo completamente senza sovrapposizioni e senza lasciare spazi vuoti.

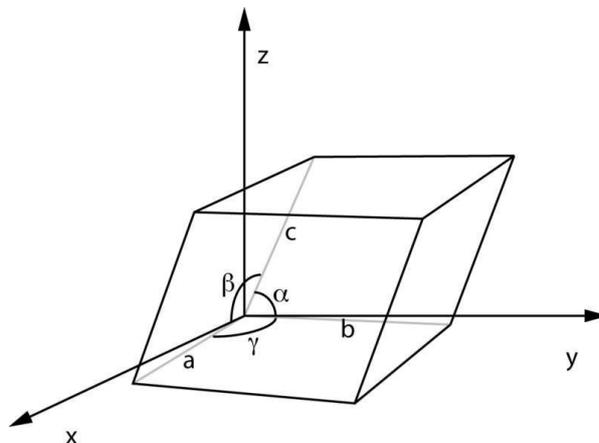


Fig. 3.1: rappresentazione di una cella elementare del reticolo cristallino con a , b e c parametri spaziali del reticolo e α , β e γ ampiezza degli angoli.

Si possono scegliere i vettori primitivi in modo tale da definire una cella unitaria convenzionale, cioè una cella con la più semplice geometria che rispecchia quella del reticolo.

Nel caso bidimensionale ci sono in tutto cinque tipologie di reticoli di Bravais, che rispecchiano le simmetrie alla base del reticolo stesso; questi sono: obliquo, rettangolare, rettangolare centrato, esagonale e quadrato, le cui proprietà geometriche sono illustrate in Fig. 3.2.

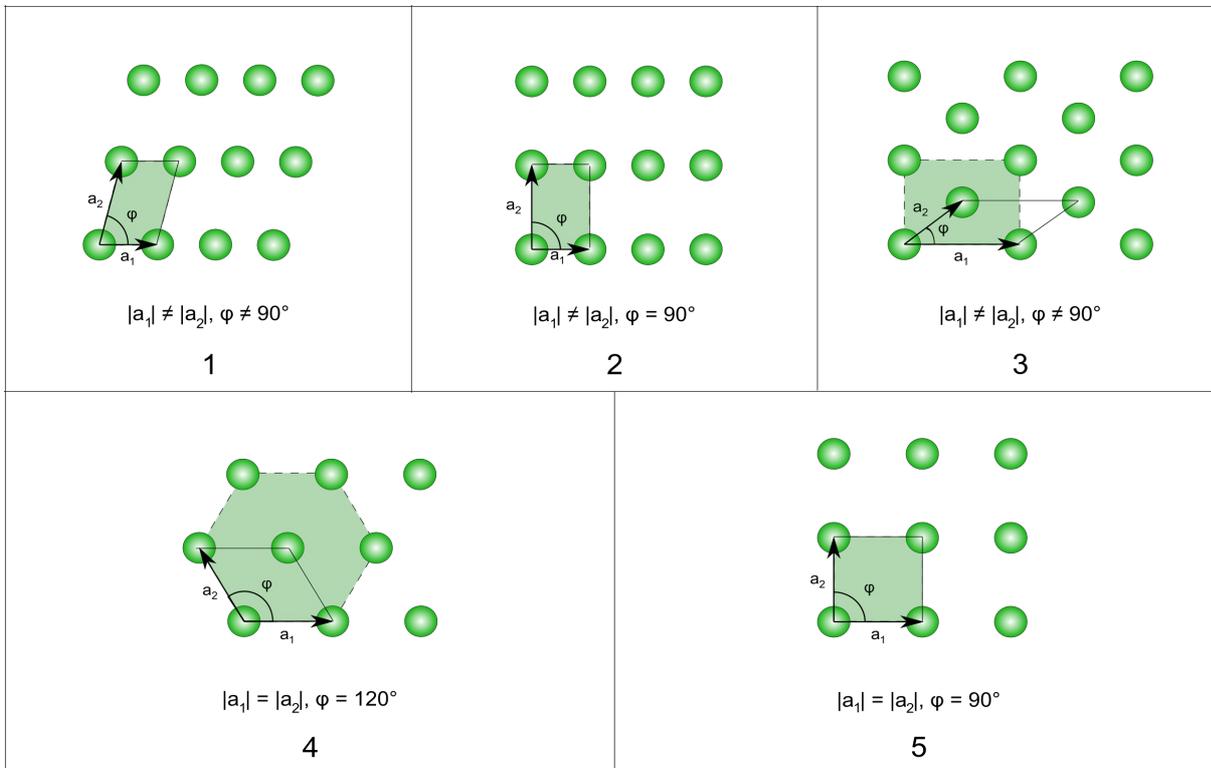


Fig. 3.2: raffigurazione dei cinque reticoli di Bravais in due dimensioni con la cella unitaria convenzionale che li rappresenta. Immagine da: Wikipedia.

Si dimostra che le varie geometrie possibili per i cristalli a tre dimensioni vanno a costituire sette possibili classi, dette sistemi cristallini, che a sua volta sono accomunati in 3 gruppi diversi, a seconda del numero di costanti di reticolo che li rappresentano:

- monometrico: è il gruppo in cui i tre parametri spaziali coincidono;
- dimetrico: è il gruppo in cui due dei tre parametri spaziali coincidono;
- trimetrico: è il gruppo in cui tutti e tre i parametri sono diversi tra loro.

In molti casi i parametri angolari α , β e γ non vengono definiti in modo esplicito poiché è possibile ricavarli dalla geometria stessa del sistema cristallino.

In tre dimensioni, i sette sistemi cristallini si identificano con 14 reticoli di Bravais possibili, rappresentati in Fig 3.3.

La classificazione e i parametri caratteristici dei reticoli sono espressi in tabella 3.1.

La cristallografia, dunque, studia la struttura dei reticoli di Bravais e le proprietà di simmetria che sono associate ai vari cristalli. Tramite la teoria dei gruppi si dimostra che le proprietà di simmetria possibili per i reticoli di Bravais con cella unitaria fissata in tre dimensioni sono date da 32 classi di simmetria puntuale, che danno luogo a 230 gruppi spaziali possibili [6].

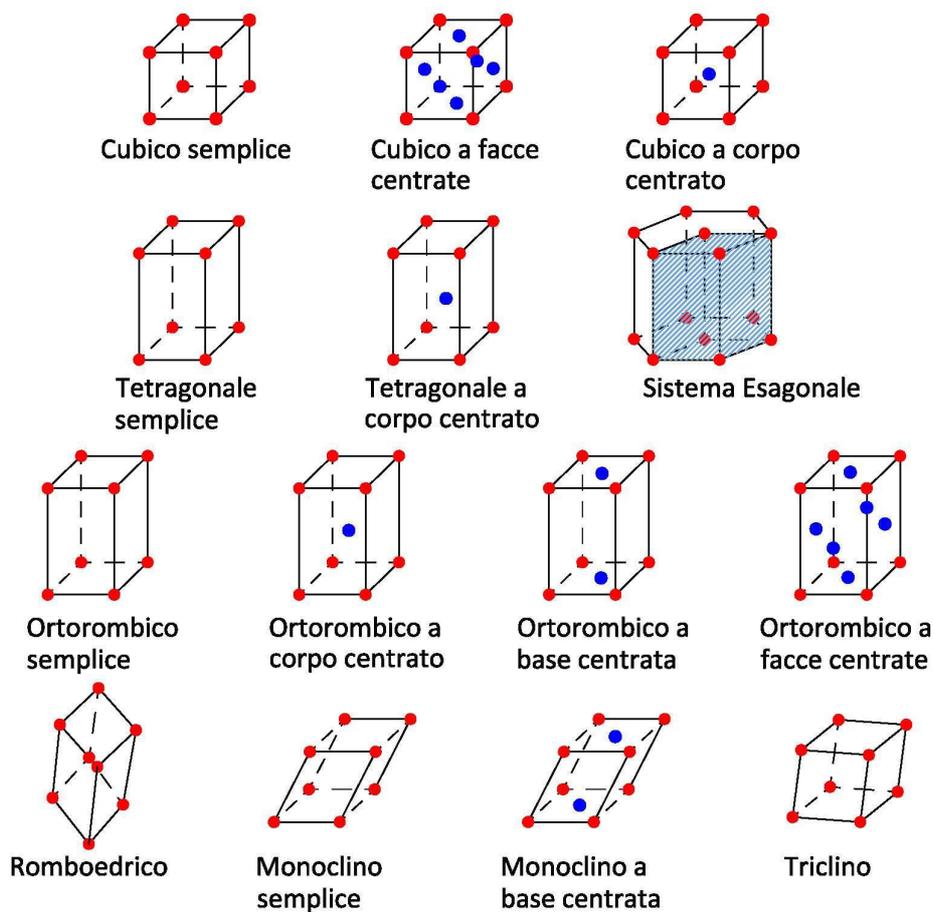


Fig. 3.3: rappresentazione dei 14 reticoli di Bravais in tre dimensioni.

Nome	Sigla	Parametri spaziali	Parametri angolari
Cubico semplice	SC	$a = b = c$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
Cubico a corpo centrato	BCC		
Cubico a facce centrate	FCC		
Tetragonale semplice	ST	$a = b \neq c$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
Tetragonale a corpo centrato	BCT		
Esagonale	HEX	$a = b \neq c$	$\alpha = \beta = 90^\circ \quad \gamma = 120^\circ$
Ortorombico semplice	SO	$a \neq b \neq c$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$
Ortorombico a base centrata	ORC		
Ortorombico a corpo centrato	ORC		
Ortorombico a facce centrate	ORC		
Romboedrico	HEX	$a = b = c$	$\alpha = \beta = \gamma \neq 90^\circ$
Monoclino semplice	MCL	$a \neq b \neq c$	$\alpha = \gamma = 90^\circ \quad \beta \neq 120^\circ$
Monoclino centrato	MCL		
Triclino	T	$a \neq b \neq c$	$\alpha \neq \beta \neq \gamma \neq 90^\circ$

Tabella 3.1: classificazione dei 14 reticoli di Bravais. I parametri spaziali sono misurati in Å.

Per i processi di diffusione è utile definire un altro tipo di cella primitiva, centrata su un punto del reticolo di Bravais, che gode di tutte le proprietà di simmetria della struttura cristallina. La sua rappresentazione può essere fatta a partire dai segmenti che congiungono il punto al centro della cella con i punti più vicini, detti primi vicini: intersecando i segmenti con dei piani perpendicolari si viene a formare una regione di spazio definita da un poliedro. Questa cella è detta cella di Wigner-Seitz (Fig. 3.4).

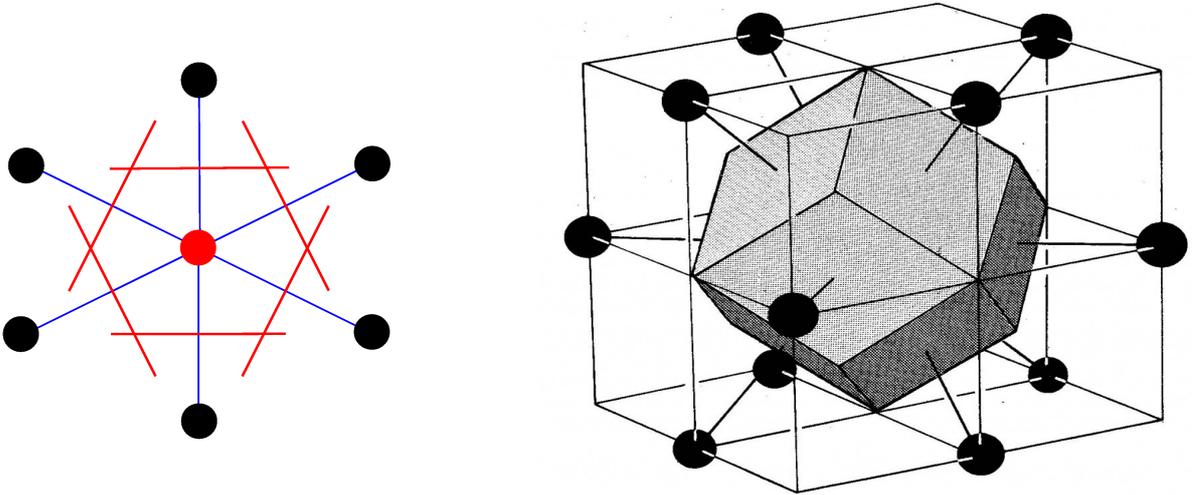


Fig. 3.4: cella di Wigner-Seitz in due e in tre dimensioni rispettivamente. Le immagini raffigurano il caso di un reticolo esagonale (2D) e un dodecaedro romboedale (3D). Da: Wikipedia.

Data un'onda piana $\Psi = Ae^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$, Ψ può avere la stessa periodicità del reticolo di Bravais per alcuni valori di \mathbf{k} . L'insieme \mathbf{K} dei vettori d'onda che generano onde piane con la stessa periodicità di un dato reticolo di Bravais viene detto reticolo reciproco e corrisponde alla condizione (3.2), per ogni punto \mathbf{R} del reticolo.

$$Ae^{i\vec{K}\cdot(\vec{r}+\vec{R})} = Ae^{i\vec{K}\cdot\vec{r}} \rightarrow e^{i\vec{K}\cdot\vec{R}} = 1 \quad (3.2)$$

Un reticolo reciproco costituisce un reticolo di Bravais nello spazio dei vettori d'onda e viene associato in modo univoco ad un reticolo dello spazio reale, detto spazio diretto. I vettori dello spazio reciproco sono definiti dalla relazione:

$$\vec{K} = m_1 \vec{b}_1 + m_2 \vec{b}_2 + m_3 \vec{b}_3 \quad (3.3)$$

dove m indica numeri interi e i vettori \mathbf{b} sono i vettori primitivi dello spazio reciproco. La relazione tra i vettori primitivi dello spazio reciproco e quelli dello spazio diretto è data dalla seguente:

$$\begin{aligned} \vec{b}_1 &= 2\pi \frac{\vec{a}_2 \times \vec{a}_3}{\vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)} \\ \vec{b}_2 &= 2\pi \frac{\vec{a}_3 \times \vec{a}_1}{\vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)} \\ \vec{b}_3 &= 2\pi \frac{\vec{a}_1 \times \vec{a}_2}{\vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)} \end{aligned} \quad (3.4)$$

In fisica dello stato solido, il reticolo reciproco assume un'importanza cruciale per la determinazione della geometria cristallina e lo studio della diffusione elastica e anelastica. Dati tre punti non collineari della cella unitaria tridimensionale, è possibile definire un piano passante per tali punti, detto piano reticolare. Tale piano si estende su tutta la dimensione del reticolo, inglobandone di fatto infiniti punti. Un insieme di piani reticolari paralleli equidistanti viene detto famiglia di piani e viene definito da uno specifico d-spacing, cioè dalla distanza d caratteristica tra i piani, e dal vettore \mathbf{g}_{hkl} , espressi nel modo seguente:

$$\vec{\mathbf{g}}_{hkl} = h\vec{\mathbf{b}}_1 + k\vec{\mathbf{b}}_2 + \ell\vec{\mathbf{b}}_3 \quad \rightarrow \quad d = \frac{2\pi}{|\vec{\mathbf{g}}_{hkl}|} \quad (3.5)$$

dove i vettori \mathbf{b} sono i vettori primitivi di un dato spazio reciproco e h, k e ℓ sono numeri naturali detti indici di Miller. La terna di indici (hkl) denota i piani reticolari perpendicolari a un dato vettore \mathbf{g}_{hkl} che, in base alla sua definizione, risulta essere un vettore dello spazio reciproco. Quando un piano è parallelo a uno dei vettori primitivi, l'indice di Miller corrispondente si annulla. Il piano a cui sono associati h, k e ℓ intercetta i punti $\mathbf{a}_1/h, \mathbf{a}_2/k$ e \mathbf{a}_3/ℓ del reticolo di Bravais dello spazio diretto (Fig. 3.5).

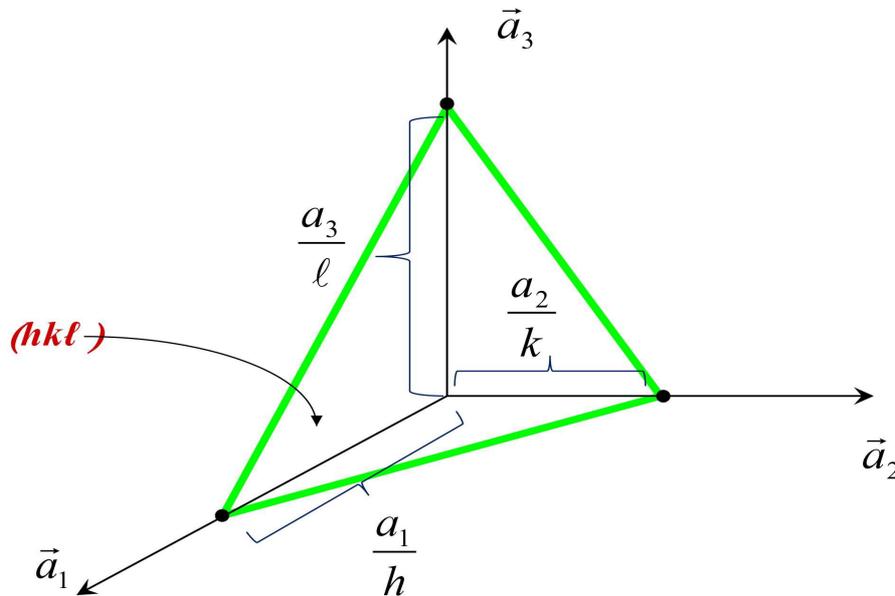


Fig. 3.5: piano reticolare di indici (hkl) passate per tre punti dello spazio diretto $\mathbf{a}_1/h, \mathbf{a}_2/k$ e \mathbf{a}_3/ℓ .

Il caso più semplice riguarda i reticoli di Bravais cubici semplici poiché sia i vettori dello spazio diretto che quelli dello spazio reciproco sono ortogonali e di uguale lunghezza. In questo caso gli indici di Miller rappresentano le direzioni normali in coordinate cartesiane (Fig. 3.6).

Il d-spacing dei reticoli cubici con costante reticolare a è dato dalla relazione:

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + \ell^2}} \quad (3.6)$$

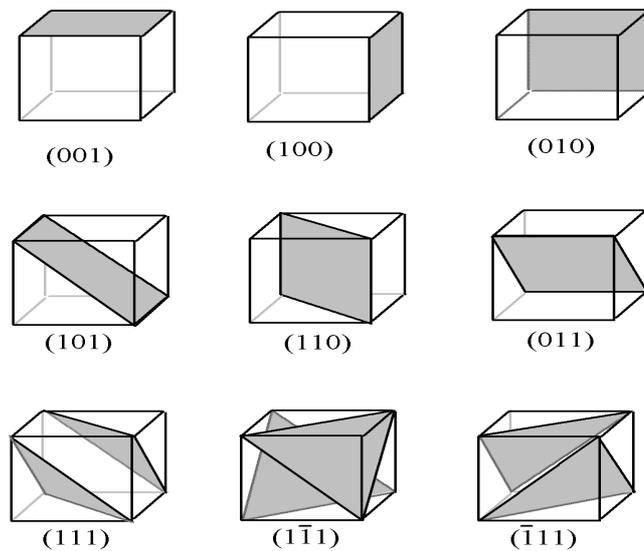


Fig. 3.6: piani reticolari del reticolo reciproco cubico, definiti dagli indici di Miller (hkl).

Come descritto nel capitolo 1, i processi di scattering sfruttano la distanza tra i reticoli per stabilire le condizioni di interferenza costruttiva secondo la legge di Bragg. In particolare, risulta utile definire la geometria della cella di Wigner-Seitz associata al reticolo reciproco che prende il nome di prima zona di Brillouin. Oltre ad essere una struttura che rispecchia tutte le simmetrie possibili in un dato reticolo, la prima zona di Brillouin permette di definire dei punti convenzionali di maggiore interesse nello studio dei processi di diffusione.

Prendendo in esempio un reticolo cubico a facce centrate (fcc), la cella di Wigner-Seitz nello spazio reciproco è data da un ottaedro tronco (Fig. 3.7). I punti principali sono:

- Γ – centro della prima zona di Brillouin;
- K – metà di un bordo di coniugazione di due facce esagonali;
- L – centro di una faccia esagonale;
- U – metà di uno spigolo che unisce una faccia esagonale e una quadrata;
- W – vertice;
- X – centro di una faccia quadrata.

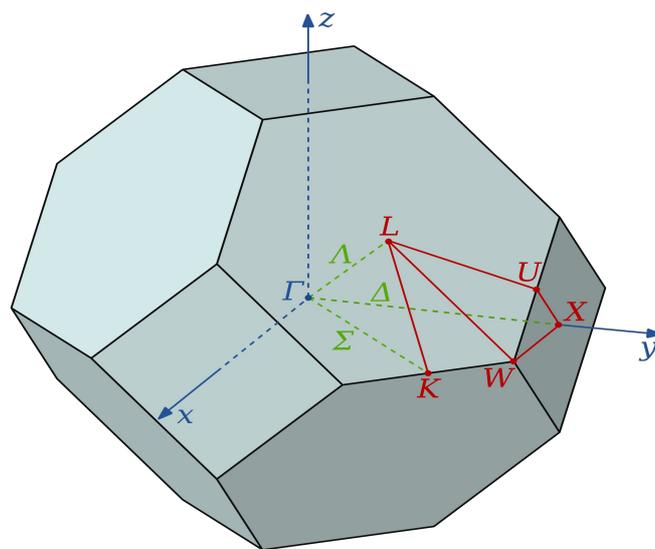


Fig. 3.7: prima zona di Brillouin nello spazio reciproco di un reticolo cubico a facce centrate (ottaedro tronco).

3.2 – Vibrazioni reticolari

Secondo il modello classico delle vibrazioni elementari, un cristallo monoatomico unidimensionale può essere approssimato da N sfere di massa M poste a distanza reciproca a ed in interazione tra loro tramite un potenziale armonico di costante elastica α . Le sfere rappresentano gli atomi disposti nel cosiddetto reticolo cristallino (Fig. 3.1). Questo sistema corrisponde a N oscillatori armonici accoppiati e può essere definito da N equazioni del moto del tipo della (3.7), le cui soluzioni sono esprimibili da funzioni d'onda come la (3.8):

$$M \ddot{u}_n(t) = \alpha [u_{n+1}(t) - 2u_n(t) + u_{n-1}(t)] \quad \text{con } (n=1, \dots, N) \quad (3.7)$$

$$u_n(t) = A e^{i(naq - \omega t)} \quad (3.8)$$

dove ω è la pulsazione, q è il valore del vettore d'onda della particella in posizione na e A è l'ampiezza dell'oscillazione. A queste soluzioni si devono imporre le condizioni di Born – Von Karman che esprimono la periodicità della funzione: poiché l'onda si annulla agli estremi di un cristallo finito, si deve avere la seguente relazione:

$$e^{iq(a+L)} = e^{i(q\vec{a})} \rightarrow e^{iqL} = 1 \rightarrow qL = 2\pi m \quad (3.9)$$

dove L indica la posizione del secondo estremo del cristallo, il cui valore è $L = Na$, e m è un numero intero positivo o negativo.

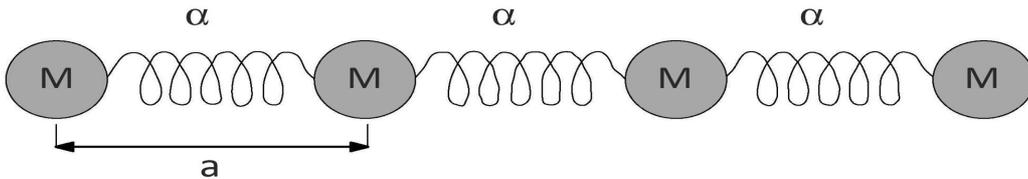


Fig. 3.8: approssimazione della struttura di un cristallo monoatomico unidimensionale.

Dalla (3.9) si evince che q può assumere solo valori discreti, il cui valore è espresso dalla (3.10). Data la semplice simmetria spaziale del sistema, tutte le soluzioni indipendenti possono essere espresse in una zona limitata del piano $(q, \omega(t))$ detta prima zona di Brillouin, definita dalle condizioni (3.11). Con semplici passaggi matematici si ottiene una relazione di dispersione $\omega(q)$ espressa dalla (3.12) che stabilisce le uniche frequenze ammesse dal sistema.

$$q = \frac{m}{N} \frac{2\pi}{a} \quad \text{con } m \in \mathbb{Z} \quad (3.10)$$

$$-\frac{\pi}{a} \leq q \leq \frac{\pi}{a} \leftrightarrow -\frac{N}{2} \leq m \leq \frac{N}{2} \quad (3.11)$$

$$\omega(q) = 2 \sqrt{\frac{\alpha}{M}} \cdot \left| \sin\left(\frac{a}{2} q\right) \right| \quad (3.12)$$

Una soluzione del tipo (3.8) definisce un'onda che descrive un moto collettivo del sistema di N oscillatori accoppiati, che oscillano alla stessa frequenza e trasmettono un'onda vibrazionale, la cui ampiezza massima è data da A , con vettore d'onda di valore q , legato alla pulsazione tramite la (3.12). La curva che definisce la relazione di dispersione nella prima zona di Brillouin è rappresentata in Fig. 3.9.

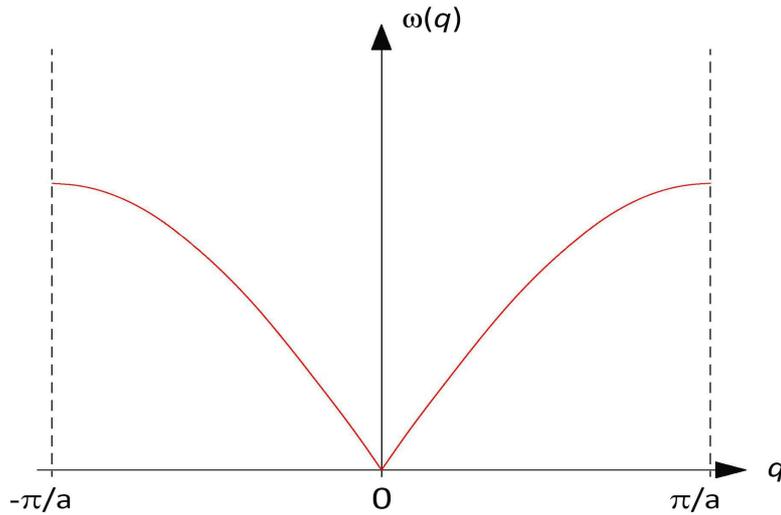


Fig. 3.9: curva di dispersione che definisce un modo vibrazionale di un cristallo monoatomico unidimensionale nella prima zona di Brillouin.

Nel caso di un cristallo biatomico unidimensionale, l'approssimazione viene fatta considerando una interazione elastica, espressa dalla costante α , tra N atomi di massa M_1 e N atomi di massa M_2 , in posizioni alterne, per un totale di $2N$ atomi disposti in N siti reticolari di ampiezza a (Fig. 3.10).

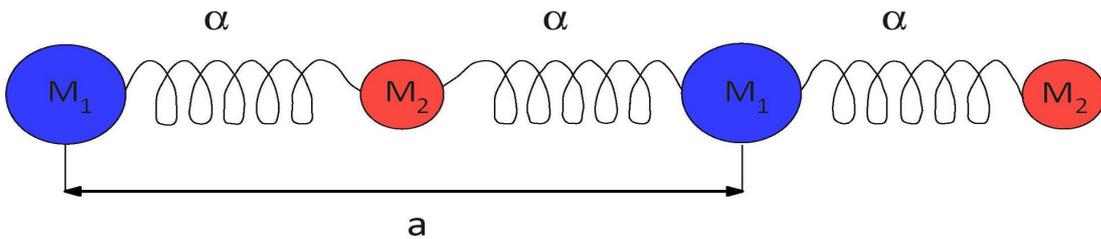


Fig. 3.10: approssimazione della struttura di un cristallo biatomico unidimensionale.

Con una trattazione analoga al caso monoatomico si ottengono 2 valori di ω per ogni valore del vettore d'onda \mathbf{q} , dati dall'espressione seguente:

$$\omega_{1,2}(\vec{q}) = \sqrt{\alpha \left\{ \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right) \pm \sqrt{\left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right)^2 - \frac{4}{M_1 M_2} \sin^2 \left(\frac{\vec{a} \cdot \vec{q}}{2} \right)} \right\}} \quad (3.13)$$

Questo risultato permette di scomporre i $2N$ modi normali della prima zona di Brillouin in due branche distinte, quella ottica e quella acustica, rappresentate in Fig. 3.11. Per la branca acustica, quando $q \rightarrow 0$ ($\lambda \rightarrow \infty$), la relazione di dispersione si può approssimare in modo lineare. Ciò comporta una velocità limite per la propagazione delle onde vibrazionali di grande lunghezza d'onda coincidente con la velocità del suono, da cui la definizione di *acustica*. A differenza dei modi acustici, che si propagano in fase, i modi ottici hanno oscillazioni dei due atomi M_1 e M_2 in opposizione di fase. Nel caso questi siano ioni, tale fenomeno induce un momento di dipolo elettrico che interagisce fortemente con la radiazione elettromagnetica nella regione dell'infrarosso ($\omega \approx 10^{12}$ Hz). Questo fatto ha associato la nomenclatura di branca *ottica* a tali modi vibrazionali. Dalla Fig. 3.11 si nota come per $q = \pi/2$ le frequenze delle due branche non coincidano perciò esiste un gap di frequenze proibite in cui non compaiono modi vibrazionali.

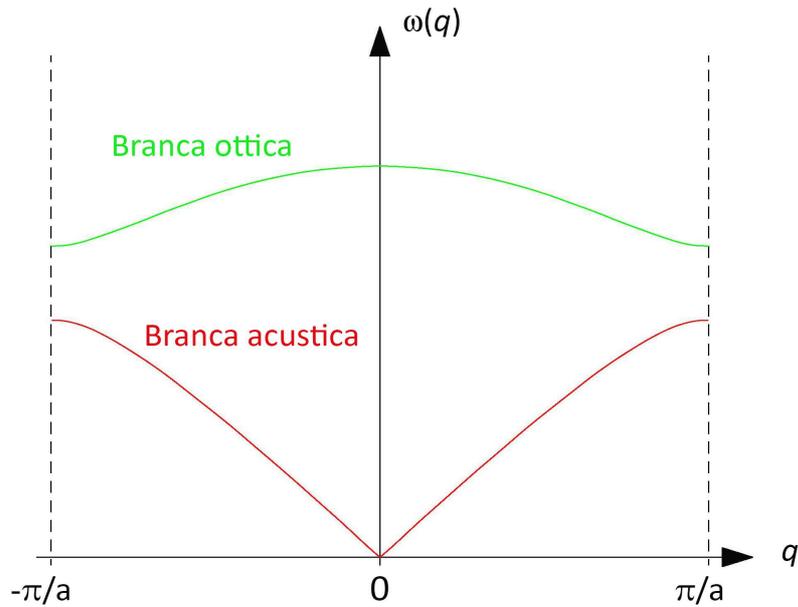


Fig. 3.11: curva di dispersione rappresentante le branche ottica e acustica dei modi vibrazionali di un cristallo biatomico unidimensionale.

La trattazione di questi semplici modelli può essere estesa al caso tridimensionale che assume maggiore importanza per la comprensione dei sistemi fisici cristallini, in particolare dei cristalli con strutture reticolari pluriatomiche complesse, come quelle illustrate nel paragrafo precedente. Nel caso di un sistema p -atomico tridimensionale si avranno, per analogia, $3pN$ modi normali, di cui $3N$ acustici e $3(p-1)N$ ottici. In 3 dimensioni gli atomi possono oscillare nelle 3 direzioni spaziali dando origine a un modo longitudinale di compressione e due modi trasversali, per ogni vettore d'onda \mathbf{q} . Il moto di ogni singolo atomo sarà quindi dato dalla sovrapposizione di tutti gli spostamenti derivanti da tutti i modi normali attivi nel cristallo. Nel caso di un cristallo tridimensionale biatomico si avrà un totale di $6N$ modi vibrazionali, di cui N acustici e N ottici longitudinali (LA e LO), e $2N$ modi acustici più $2N$ modi ottici trasversali (TA₁, TA₂ e TO₁, TO₂), come rappresentato in Fig. 3.12.

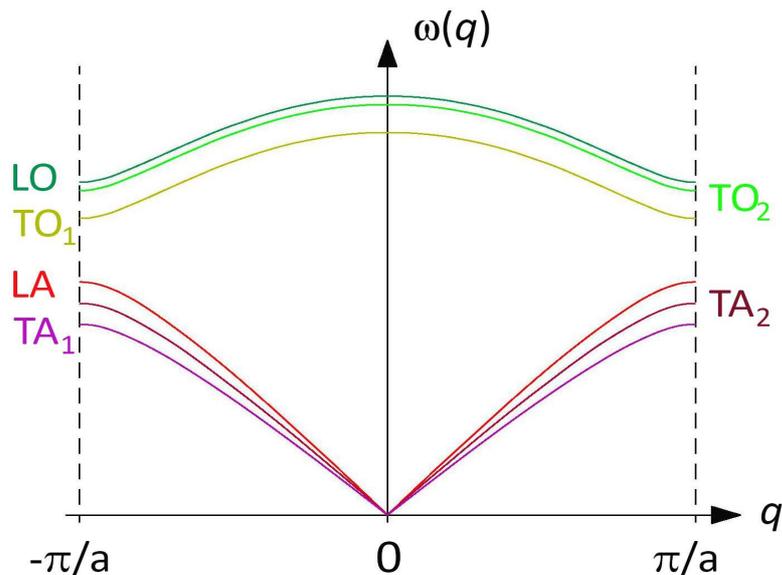


Fig. 3.12: branche ottiche (LO, TO₁, TO₂) e acustiche (LA, TA₁, TA₂) di un cristallo biatomico tridimensionale.

Nel passaggio dal modello classico a quello quantistico si dimostra che ad ogni modo vibrazionale è associato un quanto di energia $E_S = \hbar \omega_S(\vec{q})$, dove il pedice S rappresenta l'indice di branca. Tale quanto viene detto fonone e rispetta la nomenclatura associata alle branche dei modi vibrazionali. La funzione d'onda per un cristallo monoatomico assume la forma espressa in (3.14) e le energie permesse al singolo oscillatore quantistico sono date dall'espressione (3.15), dove S varia tra 1 e 3, n tra 1 e N, M è la massa del singolo atomo, \mathbf{Z} è la posizione del sito reticolare, \hat{c} e \hat{a} sono gli operatori di creazione e distruzione, ν è il numero quantico vibrazionale, \mathbf{e} è l'autovettore normalizzato del modo vibrazionale in direzione S.

$$u_n(t) = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2NM}} \sum_{S,\vec{q}} \frac{\vec{e}_{S,\vec{q}}}{\sqrt{\omega_S(\vec{q})}} \cdot \left\{ \hat{a}_{S,\vec{q}} e^{i[\vec{q} \cdot \vec{Z}_n - \omega_S(\vec{q})t]} + \hat{c}_{S,\vec{q}} e^{-i[\vec{q} \cdot \vec{Z}_n - \omega_S(\vec{q})t]} \right\} \quad (3.14)$$

$$E_{S,\vec{q}} = \left(\nu_{S,\vec{q}} + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega_S(\vec{q}) \quad (3.15)$$

3.3 – Diffrattometro a triplo-asse

Come illustrato nel capitolo 1, la diffusione anelastica si verifica quando i neutroni scambiano energia con il campione, cioè quando il modulo del vettore d'onda incidente k_0 ha un valore diverso dal modulo del vettore d'onda diffuso k_1 . In tale condizione il vettore d'onda scambiato $\mathbf{Q} = \mathbf{k}_0 - \mathbf{k}_1$ identifica un punto della cella di Weigner-Seitz nello spazio reciproco, come in Fig. 3.13.

Per lo studio dei modi normali è utile definire i vettori \mathbf{G} e \mathbf{q} dati dalla relazione (3.16):

$$\vec{Q} = \vec{k}_0 - \vec{k}_1 = \vec{G} + \vec{q} \quad (3.16)$$

Il vettore \mathbf{G} identifica la posizione del picco elastico della zona di Brillouin in cui si ha la diffusione anelastica, data dal vettore \mathbf{Q} . Il vettore \mathbf{q} identifica il punto della diffusione a partire dal centro della zona di Brillouin, ossia dal picco elastico in posizione \mathbf{G} .

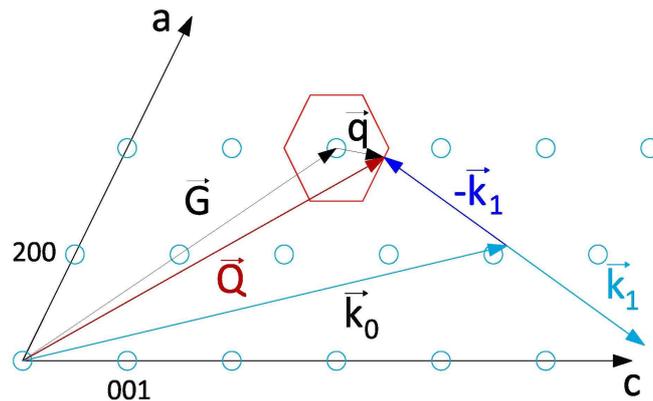


Fig. 3.13: geometria del vettore d'onda scambiato \mathbf{Q} nello spazio reciproco in funzione di \mathbf{G} e \mathbf{q} .

L'intensità della diffusione osservata è data da (3.17), che dipende dal fattore di struttura dinamico $S(\mathbf{Q},\omega)$, dalla sezione d'urto coerente σ e dalla funzione di risoluzione $R(\mathbf{Q},\omega)$, normalizzati opportunamente in termini di flusso incidente e dei vettori d'onda dei neutroni incidenti e diffusi. Anche l'effetto di incoerenza dello spin contribuisce all'intensità misurata tramite un termine costante ad ogni angolo, detto termine di *background*.

$$I(\vec{Q}_i, \omega_i) = \Phi_0(k_0) \frac{k_1}{k_0} N \frac{\sigma}{4\pi} \int S(\vec{Q}, \omega) R(\vec{Q}_i - \vec{Q}, \omega_i - \omega) d\vec{Q} d\omega + I_{BACKGROUND} \quad (3.17)$$

Uno degli strumenti storicamente più importanti per lo studio della diffusione anelastica di neutroni nella fisica dello stato solido è stato inventato da Bertrand N. Brockhouse nel 1959 e per questo vincitore del premio Nobel nel 1994. Lo strumento è noto con il nome di diffrattometro a triplo-asse, così denominato perché formato da tre moduli disposti su tre assi distinti. Con il tempo, tale tipologia di diffrattometri è divenuta sempre più efficiente ma la struttura caratteristica è rimasta quella originaria.

Al centro di ricerca dell'Institut Laue-Langevin sono disponibili diversi strumenti per la spettroscopia anelastica di neutroni, tra cui il diffrattometro a triplo-asse noto come IN3, rappresentato in Fig. 3.14. Il primo asse dello strumento inizia dalla guida di neutroni termici, dove è posto un monocromatore, cioè un cristallo che seleziona i neutroni di una certa lunghezza d'onda e li immette lungo il primo ramo dello strumento, verso il foro di uscita del fascio. Qui viene posto un monitor che ha l'utilità di effettuare il conteggio dei neutroni in ingresso, uno dei parametri necessari per ricavare la sezione d'urto differenziale dall'intensità dei neutroni diffusi. Inoltre, questo permette di impostare il conteggio massimo per un campionamento, raggiunto il quale lo strumento interrompe la raccolta dei dati. Tra il monitor e la cella del campione vengono inseriti un collimatore e un diaframma con lo scopo di aumentare la risoluzione strumentale. I collimatori usati dal triplo-asse IN3 sono del tipo Soller in ossido di gadolinio, un materiale altamente assorbente per i neutroni, e riescono ad attuare una collimazione sia orizzontale che verticale, fino all'ordine di 20'. Questo garantisce una risoluzione di circa 0.5 eV per la FWHM del picco elastico, ma una significativa riduzione del flusso di particelle.

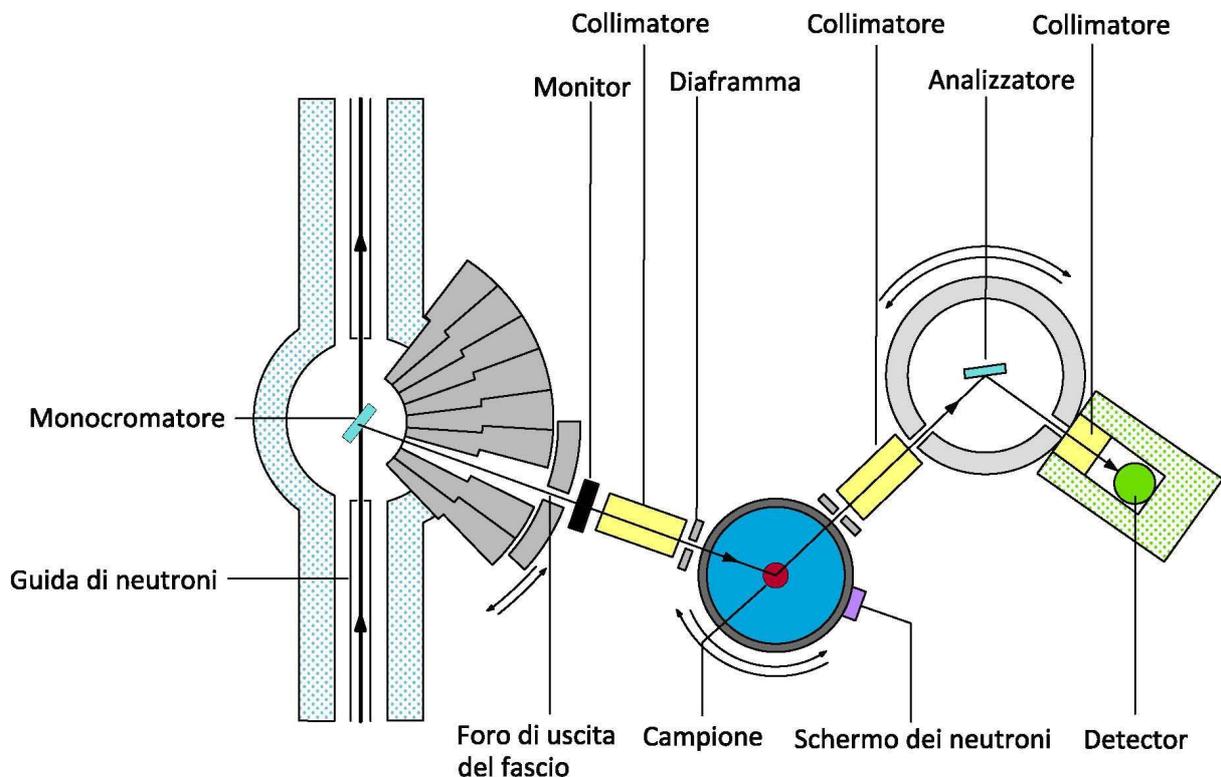


Fig. 3.14: struttura del diffrattometro a triplo-asse IN3 presso l'Institut Laue-Langevin.

Oltre i collimatori è posto un modulo ruotante su cui viene posizionato il campione. Tale modulo ha la facoltà di ruotare sia sull'asse verticale sia su quello orizzontale, e permette di cambiare a piacimento l'orientazione e l'inclinazione (non oltre i 90°) del campione. Il fascio di neutroni incide sul campione e viene parzialmente diffuso lungo determinate direzioni. Oltre il campione, lungo la traiettoria del fascio incidente, viene posizionato uno schermo che assorbe i neutroni in eccesso riducendo i possibili danni causati dal decadimento β .

Il secondo asse dello strumento inizia dal campione ed è posto lungo una direzione variabile che può essere selezionata tramite un'interfaccia del computer dello strumento. In molti esperimenti, lungo questo asse viene inserito un filtro in grafite di pochi centimetri di spessore, con lo scopo di filtrare le armoniche prodotte dalla diffusione. Il filtro in grafite pirolitica usato dall'IN3 è costruito in modo tale da trasmettere solo la prima armonica e assorbire tutte le altre.

Per migliorare la risoluzione, dopo il filtro viene posto un collimatore Soller che trasmette il fascio diffuso all'analizzatore, un cristallo che sfrutta lo stesso principio del monocromatore per la selezione dei neutroni, ma ha una funzionalità diversa, che verrà spiegata in dettaglio più avanti. L'analizzatore riflette i neutroni di una certa energia lungo il terzo asse, dove vengono collimati e conteggiati da un detector a gas di ^3He .

Il funzionamento del detector è simile a quello del contatore Geiger e può essere schematizzato come in Fig. 3.15: in un tubo cilindrico di materiale altamente trasmissivo per i neutroni termici (solitamente alluminio) viene creato un forte campo elettrico tra la superficie (catodo) e un filamento interno che si estende per tutta la lunghezza del detector (anodo). L'interno del cilindro viene riempito di gas ^3He neutro che ha un'elevata sezione d'urto di assorbimento per i neutroni termici. Nell'interazione vengono prodotte particelle di trizio e protoni secondo la relazione:



I protoni accelerati dal campo elettrico ionizzano gli atomi del gas tramite urti, creando un effetto a valanga che produce una scarica registrata dal detector. Il numero di conteggi stabilisce l'intensità misurata dal detector, che a sua volta risulta proporzionale alla sezione d'urto doppio differenziale e al flusso dei neutroni incidenti, come esplicitato nel capitolo 1.

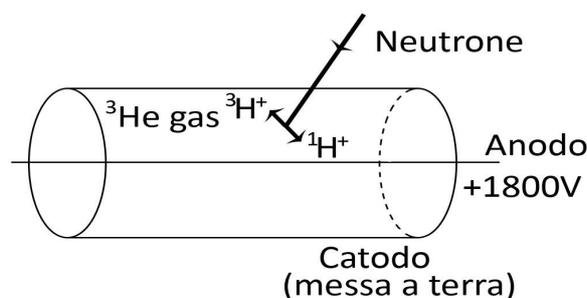


Fig. 3.15: struttura di un detector di neutroni ad ^3He .

La struttura del diffrattometro a triplo-asse permette di fare due tipi distinti di analisi:

- L'analisi con geometria diretta si ha fissando il valore dell'energia dei neutroni incidenti (E_0) e misurando l'energia dei neutroni diffusi (E_1). Questo tipo di analisi si realizza mantenendo fisso il primo asse dello strumento, in modo da selezionare solo i neutroni con un'energia stabilita, e facendo variare l'angolo tra il primo e il secondo asse, per ricavare l'onda diffusa secondo metodi discussi precedentemente. Si deve notare che per effettuare uno *scan* in energia dei neutroni diffusi bisogna ruotare anche l'analizzatore di un certo angolo θ e di conseguenza anche il terzo asse di un angolo 2θ , in accordo con la geometria del sistema.

- L'analisi con geometria inversa si ha fissando il valore dell'energia dei neutroni diffusi (E_1) e facendo un'analisi delle energie dei neutroni incidenti (E_0). Per fissare l'energia E_1 bisogna posizionare il secondo e il terzo asse dello strumento ad angoli proporzionali alla lunghezza d'onda dei neutroni diffusi, cioè al valore di energia studiata E_1 . Tali angoli si ottengono dalla legge di Bragg definita nel capitolo 1, data dalla relazione :

$$n \lambda = 2 d \sin \theta \quad (3.19)$$

dove la lunghezza d'onda λ è proporzionale all'energia fissata e l'angolo θ è dato tra il piano del reticolo e la direzione di provenienza del fascio di neutroni. Nella relazione (3.19) compare anche il parametro d che è dato dal d-spacing del cristallo usato come analizzatore.

Dalla trattazione del precedente paragrafo si deduce che la struttura cristallina dell'analizzatore incide in maniera cruciale nella selezione dei neutroni diffusi. La selezione di una determinata lunghezza d'onda della particella deve rispettare delle condizioni ben precise affinché si abbia una diffusione di tipo elastico dei neutroni. Questa condizione è detta condizione di Laue:

$$\begin{aligned} \vec{Q} \cdot \vec{a}_1 &= h 2 \pi \\ \vec{Q} \cdot \vec{a}_2 &= k 2 \pi \\ \vec{Q} \cdot \vec{a}_3 &= \ell 2 \pi \end{aligned} \quad (3.20)$$

cioè il vettore d'onda scambiato \mathbf{Q} in prodotto scalare con i vettori primitivi dello spazio diretto dà un multiplo di 2π , secondo un fattore moltiplicativo dato dagli indici di Miller. Dato un cristallo con d-spacing definito, un'onda incidente con angolo θ rispetto al piano cristallino (hkl) diffonde nella condizione elastica secondo la legge di Bragg ad un angolo preciso, cioè produce un picco di Bragg elastico ad angoli definiti dalla (3.19). Si dimostra che il picco di Bragg coincide con il centro della prima zona di Brillouin dello spazio reciproco e che in tale spazio si formano dei picchi di diffusione elastica rappresentanti la struttura cristallina stessa.

Lo strumento IN3 offre una selezione tra tre monocromatori distinti, composti a sua volta da placche monocristalline disposte in modo da essere lievemente concavi, per garantire la convergenza del flusso in modo ottimale. I monocromatori disponibili sono:

- Monocromatore Si(111), composto da 11 placche di 5 lamine di dimensione 260 x 17 mm;
- Monocromatore Cu(111), composto da una struttura di 9 x 11 cristalli da 25 x 17 mm;
- Monocromatore PG(002), la cui struttura è identica al monocromatore in rame.

La scelta del monocromatore non è casuale ed è legata alla possibilità fisica dello strumento di accedere ad alcune geometrie permesse date dalla struttura dal laboratorio. La disposizione degli assi dello strumento risulta dunque limitata dalle dimensioni stesse della zona sperimentale ed è opportuno scegliere il monocromatore adatto per ottenere la geometria strumentale necessaria allo studio del fenomeno in esame.

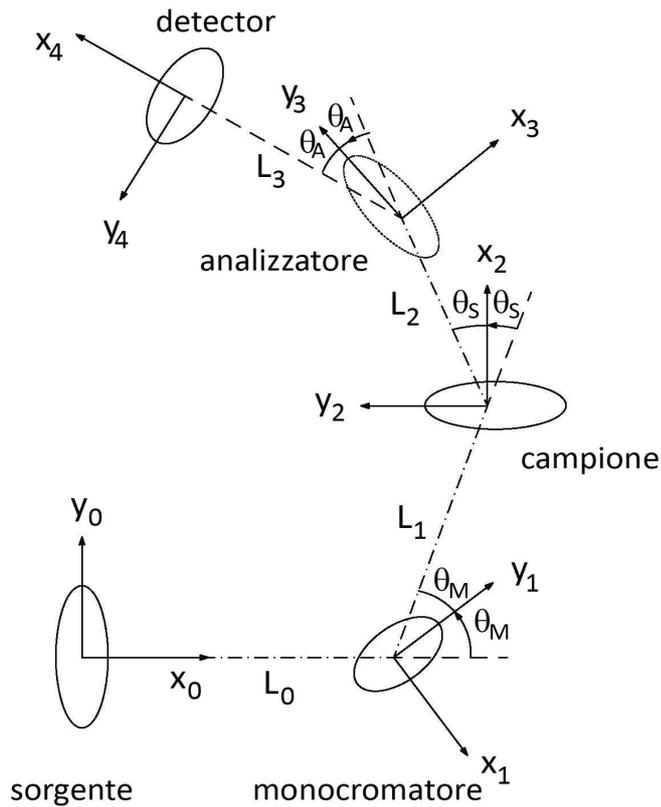


Fig. 3.16: rotazione della sezione ellissoidale del fascio incidente ad opera del monocromatore, del campione e dell'analizzatore.

Nella risoluzione delle misure di intensità dei picchi anelastici, la dimensione finita della sezione del flusso di neutroni, selezionati dal monocromatore nella guida, gioca un ruolo fondamentale. Come già accenato nel capitolo 2, le guide hanno una sezione relativamente piccola, data da un ellissoide di 30 x 60 mm, e trasportano un flusso di circa 5×10^8 neutroni per cm^2 al secondo. Come illustrato in Fig. 3.15, una sorgente di forma ellissoidale cambia la propria orientazione nel processo di diffusione elastica da parte del monocromatore e arriva ruotata di un angolo θ_M sul campione. Qui, le condizioni di diffusione precedentemente discusse riorientano la normale alla sezione del fascio di un angolo θ_S . Da qui il flusso va ad incidere sull'analizzatore dove, tramite il processo di diffusione elastica, l'immagine viene nuovamente ruotata di θ_A . Infine, tale immagine incide sul detector, dove assume la forma rappresentata in figura. Si può dimostrare (Nota) che la funzione di risoluzione è data dalla formula (3.21), in cui compare la dipendenza dai vettori d'onda incidente (\mathbf{k}_0), diffuso (\mathbf{k}_1) e scambiato (\mathbf{Q}) in relazione alle probabilità P che tali neutroni vengano conteggiati.

$$R(\omega, \vec{Q}) = \frac{\hbar^2}{m_n} \int d\vec{k}_0 d\vec{k}_1 P_0(\vec{k}_0) P_1(\vec{k}_1) \delta(\vec{Q} - \vec{k}_1 + \vec{k}_0) \delta\left[\omega - \left(\frac{\hbar}{2m_n}\right)(k_0^2 - k_1^2)\right] \quad (3.21)$$

Nel caso particolare dello studio dei modi vibrazionali tramite diffusione anelastica, la forma della sorgente produce un effetto nella risoluzione dello strumento che può essere schematizzata dalla Fig. 3.17.

Si dimostra che nella prima zona di Brillouin il fenomeno discusso provoca un allargamento dei picchi di intensità in un verso detto *divergente*, mentre viene favorito nel verso opposto, detto *convergente*, che sfrutta la geometria del fascio.

Dunque, nella misurazione dell'intensità della diffusione, non basta selezionare la zona di Brillouin opportuna, ma bisogna anche considerare l'andamento della dispersione studiata in relazione alla risoluzione strumentale offerta.

Oltre a questo fattore, la risoluzione dei picchi anelastici è influenzata dalla qualità del cristallo in termini di impurità isotopiche e difetti strutturali. Infatti le imperfezioni del cristallo dovute a compressioni o alla presenza di piccole strutture cristalline di altri elementi incidono sull'angolo di scattering e sulla larghezza del picco di diffusione.

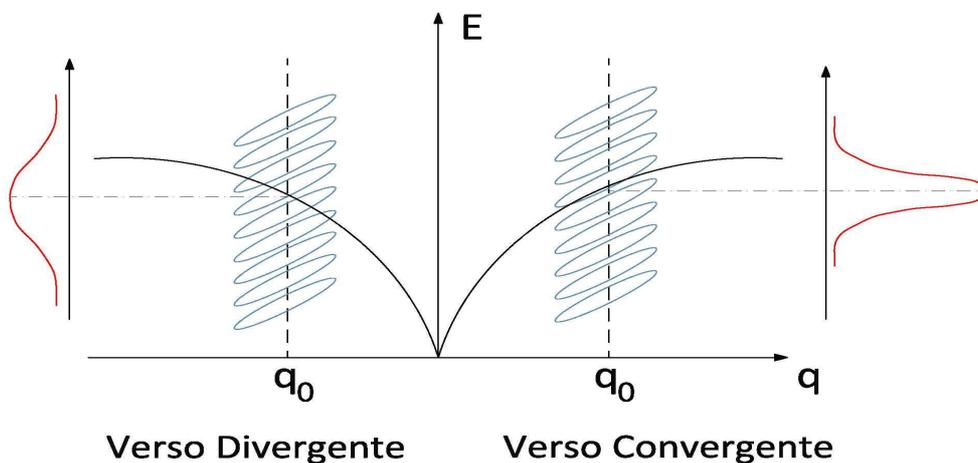


Fig. 3.17: gli effetti sulla risoluzione dell'intensità misurata nella prima zona di Brillouin, dovuti alle dimensioni finite del fascio di neutroni.

Capitolo 4

Studio della relazione di dispersione acustica di un campione di β -stagno lungo la direzione (001)

4.1 – Caratteristiche del β -stagno

Lo stagno (${}_{50}\text{Sn}$) è un metallo molto duttile, malleabile, difficilmente ossidabile e resistente alla corrosione da acqua marina e dolce. Risulta l'elemento con più isotopi stabili (10) esistente in natura. Sin dall'antichità veniva legato al rame per comporre la lega del bronzo, usata in campo bellico, domestico e artistico. Possiede due forme allotropiche con proprietà fisiche ben distinte:

- α -stagno, che è stabile a temperature inferiori a 286.35 K (13.2°C) e ha una struttura cristallina cubico-diamantina a facce centrate, molto simile a quella del silicio e del germanio. Ha una densità di 5.769 g/cm³, assume una colorazione grigio-argentea e per questo viene anche chiamato stagno grigio.
- β -stagno, che è stabile a temperature superiori a 286.35 K, ha una densità di 7.365 g/cm³, con una struttura cristallina tetragonale a corpo centrato. È la forma più comune a temperatura ambiente e ha una colorazione bianco-argentea, motivo per cui è anche chiamato stagno bianco.

A basse temperature la forma β tende a trasformarsi nella forma α in modo spontaneo, fenomeno noto come *peste dello stagno*. Malgrado la temperatura nominale di trasformazione sia 286.35 K, la presenza di piccole impurità di alcuni elementi (Al, Zn, Sb, Bi) aumenterà la stabilità della forma β , abbassando drasticamente la temperatura della transizione nella forma α .

Presso i laboratori dell'Institut Laue-Langevin di Grenoble, è stato analizzato un campione monocristallino di β -stagno utilizzando un diffrattometro a triplo-asse (IN3), perciò la trattazione seguente sarà incentrata su questa forma allotropica.

Lo stagno bianco è facilmente reperibile in natura in forma monocristallina di grandi dimensioni e ha buone proprietà di interazione con i neutroni, la cui sezione d'urto è data in tabella 4.1. Il gruppo spaziale del reticolo del β -stagno appartiene a $I4_1/amd$.

Sezione d'urto		
Coerente	Incoerente	Di assorbimento
$4.6 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$	$0.3 \pm 0.6 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$	$0.6 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$

Tabella 4.1: Sezioni d'urto del β -stagno per diffusioni da neutroni.

La struttura cristallina dello stagno bianco è data da un reticolo tetragonale a corpo centrato con due atomi per ogni punto reticolare. Questa geometria incide sulla struttura del cristallo e può essere rappresentata da due reticoli tetragonali distinti, di cui uno con origine (0, 0, 0) e l'altro con origine (a/2, 0, c/4), dove a e c sono le costanti del reticolo cristallino. Per questo cristallo le costanti a e b assumono uno stesso valore di 5.8318 Å, mentre la costante c ha un valore di 3.1819 Å. La

geometria complessiva del sistema può quindi essere vista come un reticolo cubico schiacciato su un asse, rappresentato in Fig. 4.1a.

Poiché la cella primitiva ha una struttura biatomica, si deduce che in un punto generico della prima zona di Brillouin si possono avere un totale di 6 branche della curva di dispersione, come spiegato nel capitolo precedente. Queste 6 branche si dividono in 3 ottiche e 3 acustiche, ma la ridotta simmetria del reticolo del β -stagno rispetto al reticolo cubico semplice non rende possibile una divisione delle branche secondo la nomenclatura generale spiegata nel precedente capitolo.

La forma della prima zona di Brillouin assume la struttura rappresentata in Fig. 4.1b, i cui punti di simmetria saranno analizzati nel corso della trattazione seguente.

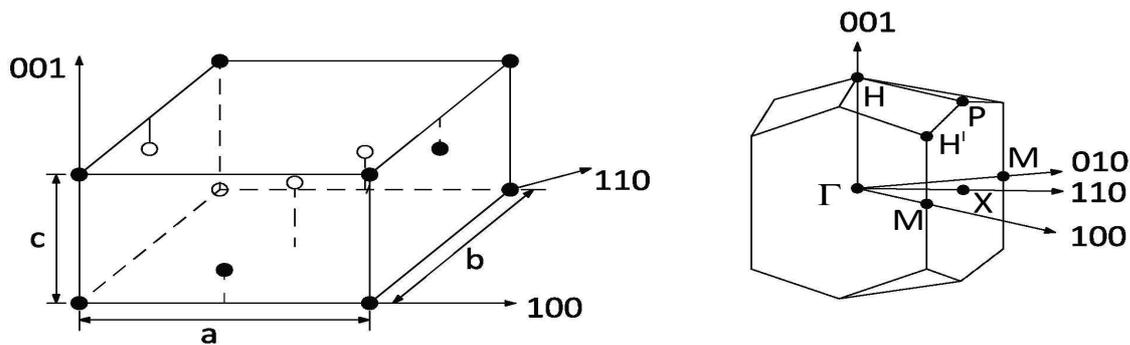


Fig. 4.1: a sinistra (a): reticolo tetragonale a corpo centrato del β -Sn; a destra (b): struttura della prima zona di Brillouin. Immagine da: *Physical Review* 163, p. 532, a cura di S. H. Chen.

4.2 – Processo sperimentale e acquisizione dati

Lo scopo dell'esperimento effettuato presso l'ILL consisteva nello studio della curva di dispersione dei modi vibrazionali acustici (a basse frequenze) di un campione monocristallino di β -stagno a temperatura ambiente tramite il diffrattometro a triplo-asse IN3. In modo particolare si è voluto studiare la propagazione di un fonone acustico intorno al picco di diffrazione 220 in direzione 001 e $00\bar{1}$ (Fig. 4.2).

Lo studio è iniziato con un processo di impostazione strumentale del diffrattometro IN3. Per posizionare il campione in modo opportuno era necessario ricavare l'orientazione delle direzioni (001) e (110) dei piani cristallini tramite la diffusione elastica dei neutroni dovuta a due piani reticolari ortogonali. Data la necessità di studiare i modi vibrazionali intorno al picco (220), i piani di diffusione scelti per questa operazione sono stati il piano (004) e il piano (440). Per determinare le informazioni sui vettori d'onda da usare nel processo si è utilizzato il programma Vtas (NOTA). Tale programma ha permesso di ricavare il modulo del vettore d'onda scambiato $Q = 6.095 \text{ \AA}^{-1}$ per avere la diffusione elastica con i piani suddetti. Per la scelta del monocromatore è stata opportuna una valutazione dello spazio minimo necessario allo strumento per la raccolta dei dati, cioè degli angoli a cui si sarebbero posizionati gli assi per il campionamento. Anche questa informazione è stata ottenuta con il programma Vtas, che ha indicato come scelta ottimale il d-spacing del monocromatore Cu (111), con distanza tra i piani $d = 2.087 \text{ \AA}$. Per la diffusione elastica con tale monocromatore e con vettore d'onda scambiato Q , il programma ha stabilito il modulo del vettore d'onda incidente e diffuso ottimale, dato da $k_0 = k_1 = 4.5 \text{ \AA}^{-1}$. Operando un'opportuna correzione dell'inclinazione del β -stagno, si sono ottenuti dei picchi elastici in corrispondenza degli angoli attesi, sfasati tra loro di 90° . La misurazione ha determinato i valori dell'offset angolare dello strumento, che hanno apportato una correzione delle costanti reticolari del campione, come rappresentato in tabella 4.2.

Valori delle costanti reticolari			
Nominali	$a = 5.8318 \text{ \AA}$	$b = 5.8318 \text{ \AA}$	$c = 3.1819 \text{ \AA}$
Sperimentali	$a = 5.8245 \text{ \AA}$	$b = 5.8245 \text{ \AA}$	$c = 3.19 \text{ \AA}$

Tabella 4.2: valori dei parametri reticolari nominali e valori corretti per il campione.

Il processo di acquisizione dei dati è stato effettuato tramite geometria inversa, perciò l'angolo tra il secondo e il terzo asse del diffrattometro è stato fissato al valore $\theta = 44.7^\circ$. In accordo con la geometria dello strumento, l'analizzatore in grafite ($d = 3.355 \text{ \AA}$) era disposto in modo tale da inviare al detector solo i neutroni con un vettore d'onda diffuso di modulo $|\mathbf{k}_1| = 2.662 \text{ \AA}^{-1}$, pari a una lunghezza d'onda dei neutroni diffusi $\lambda = 2.36 \text{ \AA}$. Il filtro in grafite pirolitica, utilizzato dallo strumento IN3, è in grado di trasmettere questa lunghezza d'onda, mentre le armoniche di ordine superiore vengono assorbite.

Gli assi dello strumento e il supporto del campione sono stati posizionati in modo tale da studiare la diffusione anelastica a partire dal piano (220). Da qui sono stati analizzati 10 punti in direzione (001) procedendo con una variazione dell'indice ℓ data da $\Delta\ell = 0.1$ (in unità di $2\pi/c$), fino a raggiungere il piano (221). Per ogni punto sono stati effettuati 50 scansionamenti in energia, con variazione $\Delta E = 0.1 \text{ meV}$ a partire dal valore 0, corrispondente alla diffusione elastica ($k_1 = k_0$). La variazione avveniva in modo automatico, ogni volta che il monitor conteggiava 10^6 neutroni in ingresso. La FIG. 4.2 mostra lo spostamento lungo il quale sono state raccolte le misure: dal punto Γ , centro della zona di Brillouin per il piano (220), è stato seguito il percorso (in rosso) fino al punto M, centro di uno spigolo, passando per il punto H, vertice che unisce quattro spigoli (Fig. 4.1b). Per confrontare la simmetria del sistema e studiare gli effetti sulla risoluzione dovuti alla geometria del fascio, sono state effettuate le stesse misurazioni (11 punti) con variazioni negative dell'indice ℓ , procedendo dal piano (220) fino al piano (22 $\bar{1}$). I dati ottenuti sono stati elaborati e confrontati con risultati di ricerca noti, come esposto nel paragrafo seguente.

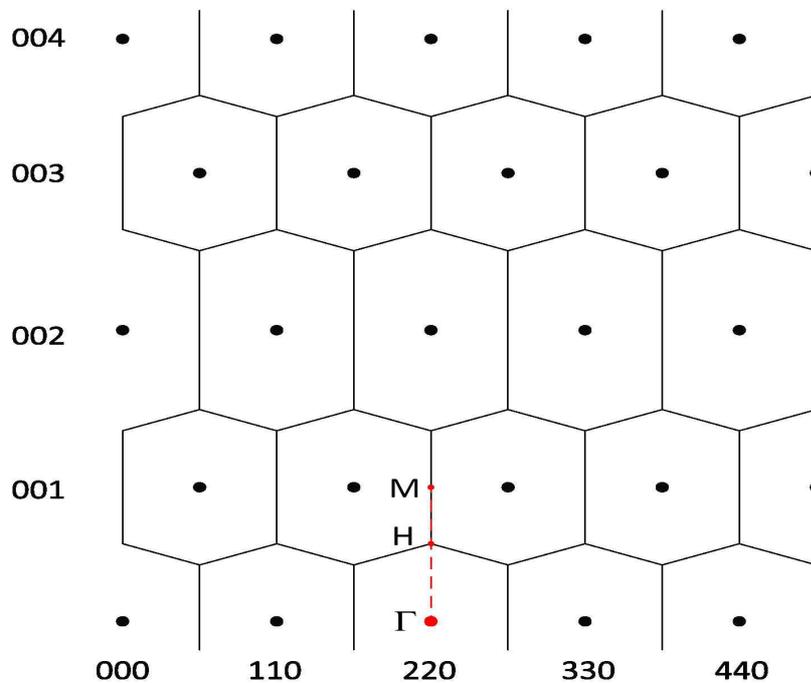


Fig. 4.2: raffigurazione del reticolo reciproco del β -Sn con la rappresentazione dello spostamento seguito nello studio della relazione di dispersione dei modi vibrazionali acustici (in rosso).

4.3 – Risultati ottenuti

Dalle misure ottenute con il diffrattometro IN3 per la relazione di dispersione lungo il piano (001) di un campione monocristallino di β -stagno sono state ottenute delle curve di distribuzione Gaussiana dei neutroni in funzione dell'energia scambiata, come quella rappresentata in Fig. 4.3. Da queste distribuzioni sono stati estrapolati i valori dei picchi dovuti alla diffusione anelastica, riportati in tabella 4.3.

Valori dei massimi e le relative incertezze delle distribuzioni Gaussiane dei conteggi di neutroni					
Direzione (001)			Direzione (00 $\bar{1}$)		
Punto	Picco elastico (meV)	FWHM (meV)	Punto	Picco elastico (meV)	FWHM (meV)
(220.1)	1.95	1.29	(220 $\bar{1}$)	2.05	0.45
-	-	-	(220 $\bar{1}$.5)	2.73	0.53
(220.2)	3.22	1.11	(220 $\bar{2}$)	3.22	0.62
(220.3)	3.90	0.94	(220 $\bar{3}$)	3.91	0.70
(220.4)	4.26	0.99	(220 $\bar{4}$)	4.22	0.74
(220.5)	4.33	0.92	(220 $\bar{5}$)	4.38	0.77
(220.6)	4.16	0.70	(220 $\bar{6}$)	4.14	1.01
(220.7)	3.61	0.74	(220 $\bar{7}$)	3.64	0.89
(220.8)	3.31	0.82	(220 $\bar{8}$)	3.31	0.93
(220.9)	3.12	0.88	(220 $\bar{9}$)	3.06	0.87
(221)	3.16	0.84	(22 $\bar{1}$)	3.11	0.86

Tabella 4.3: dati sperimentali relativi ai punti studiati, con energie e incertezze dei picchi delle relative distribuzioni Gaussiane.

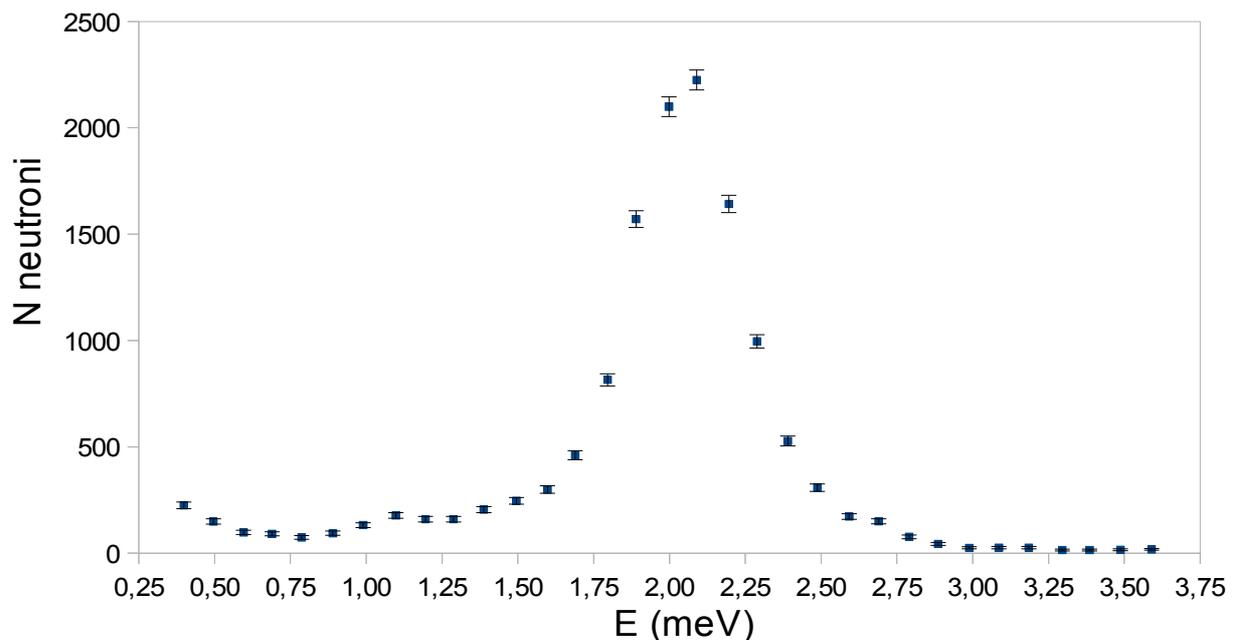


Fig. 4.3: esempio di picco di diffusione anelastica, relativo al punto (220 $\bar{1}$).

I dati ottenuti permettono di rappresentare la relazione di dispersione di una branca acustica in Fig.4.4. Si può osservare la simmetria del grafico, in particolare come il verso di percorrenza non abbia modificato i valori delle energie in modo significativo. Non viene osservata simmetria rispetto al punto (220.5) perché la direzione di percorrenza scelta prevede il passaggio per il punto H, per giungere al centro di uno spigolo dell'adiacente zona di Brillouin. Quindi il punto H (220.5) non costituisce un centro di simmetria. Lo stesso ragionamento vale per il punto H (220.5).

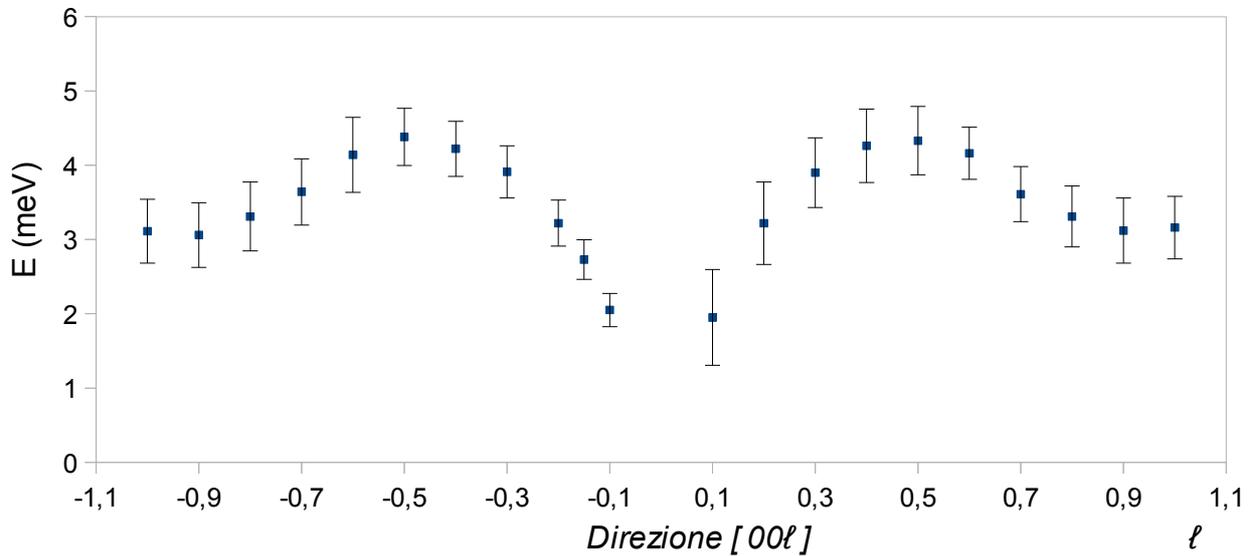


Fig. 4.4: relazione di dispersione dei modi vibrazionali acustici lungo la direzione Γ -A-H-V-M.

Si può notare tuttavia come, a partire dal centro di simmetria, l'incertezza dei valori nel verso positivo (001) sia drasticamente superiore rispetto al verso negativo (00 $\bar{1}$). Tale fenomeno è dovuto all'effetto della geometria del fascio dei neutroni sulla risoluzione strumentale, come spiegato nel capitolo precedente. Dalla Fig. 4.5 si deduce che l'ellisse rappresentante la sezione del fascio è orientata in modo da incrementare l'incertezza per valori positivi di \mathbf{q} (valori positivi di ℓ), dimostrando che il verso di percorrenza favorito per lo studio della relazione di dispersione dei modi vibrazionali con l'interferometro IN3 è il verso (00 $\bar{1}$). Da ciò si deduce che l'ellisse di risoluzione dello strumento IN3 assuma una geometria la cui orientazione è mostrata in Fig. 4.5.

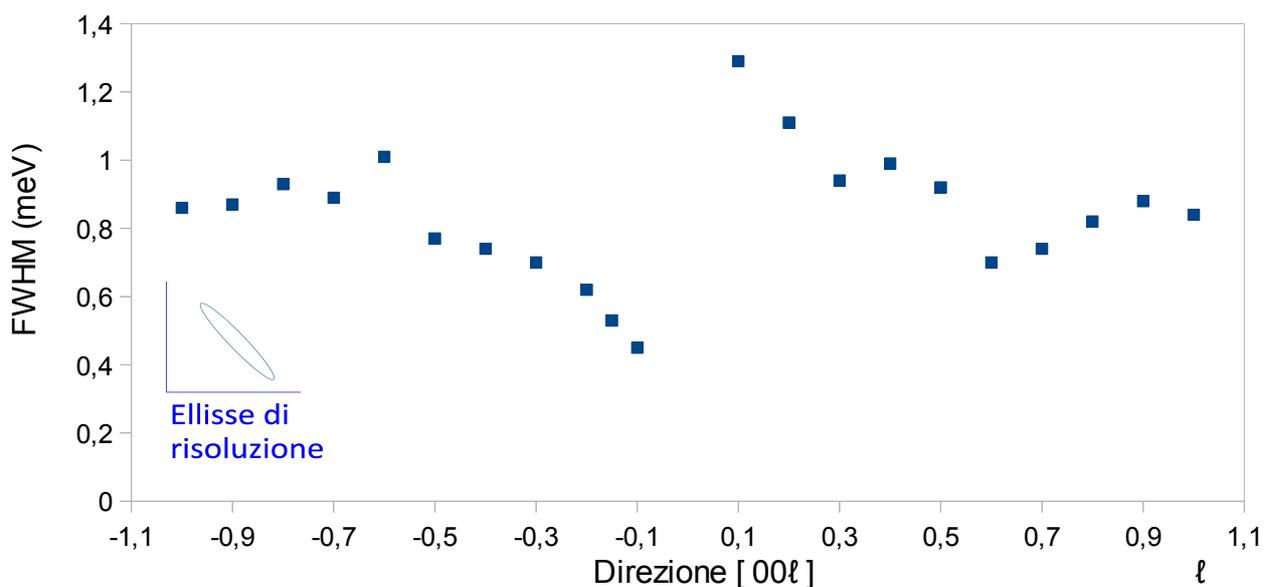


Fig. 4.5: dispersione delle FWHM dei valori sperimentali riportati in tabella 4.3.

Confrontando i risultati ottenuti con il modello teorico proposto da Chen [7] si può notare un riscontro con l'andamento della dispersione della branca acustica dovuta ai modi vibrazionali longitudinali nella direzione (001) (Fig. 4.6). In particolare, i punti ricavati approssimano in modo soddisfacente la curva di bassa frequenza $\Lambda_5 - V_5$ lungo la direzione $\Gamma - \Lambda - H - V - M$.

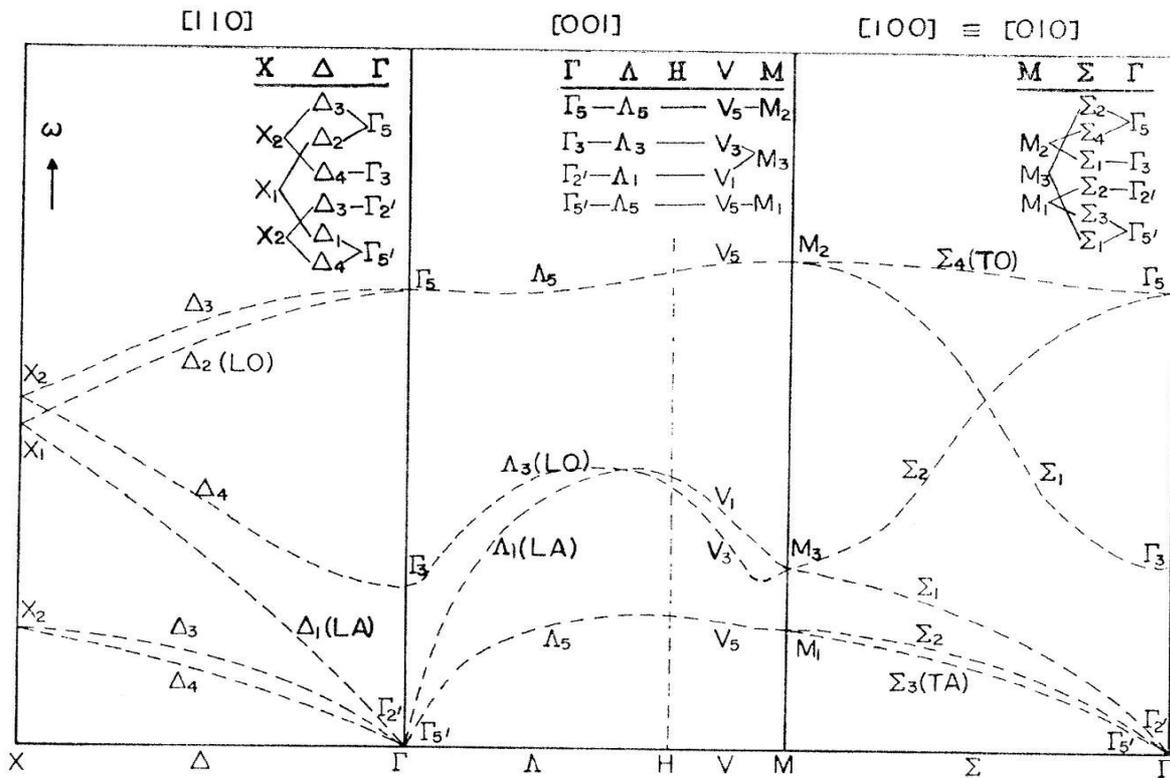


Fig. 4.6: relazione di dispersione del β -Sn secondo il modello di S. H. Chen. Immagine da: *Physical Review*, vol. 163, p. 546.

Dai dati sperimentali ottenuti con il diffrattometro a triplo-asse IN3 ed espressi in tabella 4.3 si possono ricavare i valori delle frequenze e relative incertezze, riportati in tabella 4.4.

In Fig. 4.7 si può osservare come tra le curve di dispersione studiate da J. M. Rowe [8], per un campione monocristallino di β -Sn alla temperatura di 110 K, ci sia una branca acustica a bassa frequenza in direzione $\Gamma - \zeta - H - M$. La curva ha un picco di valore $\nu \sim 1.1 \times 10^{12}$ Hz nel punto 0.5ℓ , dove ℓ varia tra 0 e $2\pi/c$.

I punti ricavati in tabella 4.4 possono essere confrontati con la relazione di dispersione ottenuta da Rowe in Fig. 4.7. Da questa analisi si ottiene un perfetto accordo tra le misure ottenute dal diffrattometro IN3 e quelle riportate da Rowe, nei limiti delle incertezze strumentali.

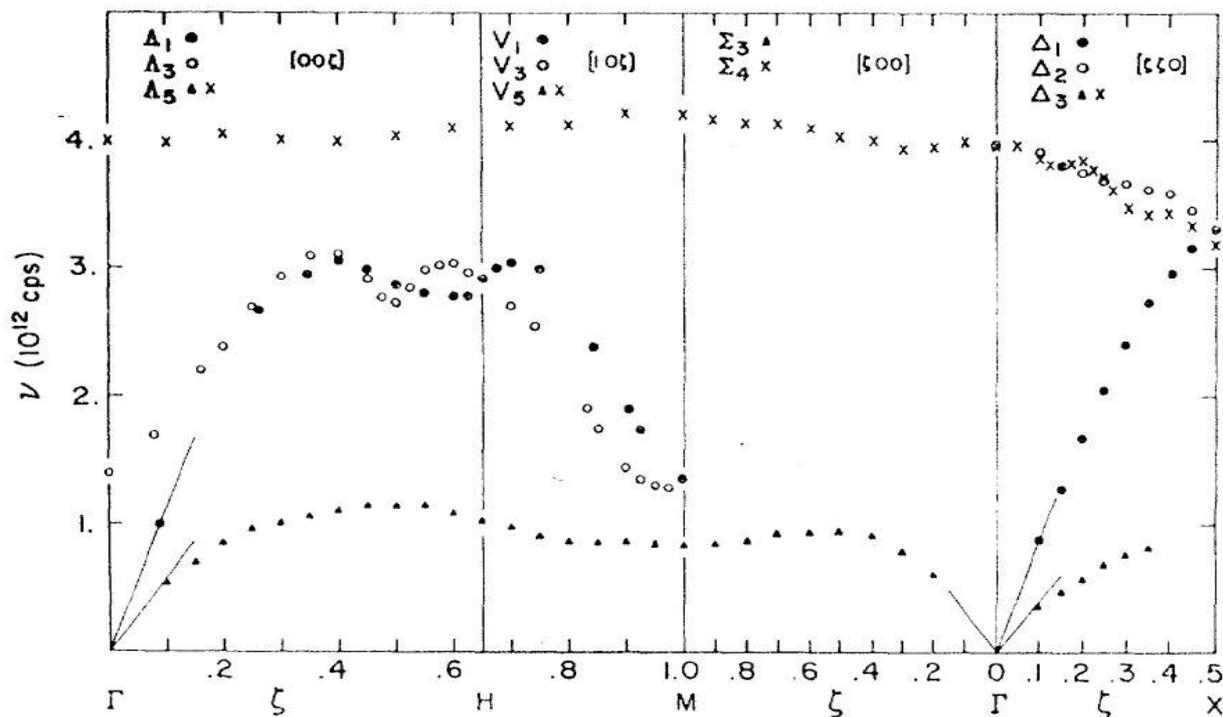


Fig. 4.7: dati sperimentali della relazione di dispersione del β -Sn alla temperatura di 110 K, ottenuti da J. M. Rowe. Immagine da: *Physical Review*, vol. 163, p. 547.

Valori in frequenza ottenuti con il diffrattometro IN3					
Direzione (001)			Direzione (00 $\bar{1}$)		
Punto	Frequenza ν (10^{12} Hz)	$\Delta\nu$ (10^{12} Hz)	Punto	Frequenza ν (10^{12} Hz)	$\Delta\nu$ (10^{12} Hz)
0.1	0.47	0.31	$\bar{0.1}$	0.50	0.11
-	-	-	$\bar{0.15}$	0.66	0.13
0.2	0.78	0.27	$\bar{0.2}$	0.78	0.15
0.3	0.94	0.23	$\bar{0.3}$	0.94	0.17
0.4	1.03	0.24	$\bar{0.4}$	1.02	0.18
0.5	1.05	0.22	$\bar{0.5}$	1.06	0.19
0.6	1.00	0.17	$\bar{0.6}$	1.00	0.24
0.7	0.87	0.18	$\bar{0.7}$	0.88	0.21
0.8	0.80	0.20	$\bar{0.8}$	0.80	0.22
0.9	0.75	0.21	$\bar{0.9}$	0.74	0.21
1	0.76	0.20	$\bar{1}$	0.75	0.21

Tabella 4.4: valori delle frequenze e relative incertezze corrispondenti ai punti espressi nella tabella 4.3, ottenuti tramite il diffrattometro IN3 presso i laboratori dell'ILL.

Conclusioni

L'esperimento che ho svolto presso i laboratori dell'Institut Laue-Langevin aveva lo scopo di mostrare le potenzialità dei neutroni nello studio della materia, con particolare riguardo verso la tecnica spettroscopica di diffusione anelastica su solidi monocristallini. Nel passaggio dall'approccio teorico a quello pratico-sperimentale, ho avuto modo di conoscere gli strumenti offerti dall'ILL e studiare in dettaglio il diffrattometro a triplo-asse IN3. Con questo strumento ho effettuato uno studio della curva di dispersione dei modi vibrazionali acustici a basse frequenze di un campione monocristallino di β -stagno a temperatura ambiente. In particolare, ho potuto osservare la propagazione di un fonone acustico intorno al picco di diffrazione 220 in direzione 001 e $00\bar{1}$, e i dati che ho ottenuti sono risultati essere in perfetto accordo con il modello teorico proposto da Chen [8] e i valori sperimentali ottenuti da Rowe [9].

Nel processo di ricerca sono entrato in contatto con ricercatori provenienti da tutto il mondo, che mi hanno mostrato il metodo di ricerca nel campo della fisica dello stato solido e trasmesso la passione per l'indagine scientifica. Grazie alla dedizione della Scuola Italiana di Spettroscopia Neutronica ho avuto una panoramica pluridisciplinare sulle applicazioni delle tecniche neutroniche negli ambiti della fisica, della chimica, della biologia, della geologia e del restauro dei beni culturali.

L'esperienza mi ha permesso di sviluppare un approccio critico all'impostazione della ricerca, a partire dalla selezione dello strumento opportuno per il fenomeno che si desidera osservare, e il desiderio di proseguire lo studio degli argomenti trattati nella tesi.

Note e Bibliografia

Note:

- [1] – Eisberg R., Resnick R., *Quantum Physics of atoms, molecules, solids, nuclei, and particles*, 1974, p. 85 e p. 165.
- [2] – Willis B. T. M., Charlile C. J., *Experimental Neutron Scattering*, 2009, p. 19 e p. 238.
- [3] – Scars V. F., Williams G., Balcer E., Lovesey S. W., *Neutron Optics, an introduction to the theory of neutron optical phenomena and their applications*, 1989, p. 45 e p. 63.
- [4] – Chen S. H., Kotlarchyk M., *Interactions of Photons and Neutrons with matter*, 2007, p. 371.
- [5] – Liang L., Rinaldi R., Schober H., *Neutron applications in earth, energy and environmental sciences*, 2009.
- [6] – Birman J. L., *Theory of Crystal Space Groups and Lattice Dynamics: Infra-red and Raman Optical Processes of Insulating Crystal*, 1984
- [7] – Cooper J., Nathans R., *The resolution function in neutron diffractometry*, Acta Crystallographica, vol. 23, 1967, p. 357.
- [8] – Chen S. H., *Physical Review*, vol. 63, 1967, p. 532.
- [9] – Rowe J. M., *Physical Review*, vol. 63, 1967, p. 547.

Bibliografia:

- Fisher H. E., Barnes A. C., Salmon P. S., *Reports on Progress in Physics*, vol. 69, 2006, p. 233-299.
- Lovesey S. W., *Theory of neutron scattering from condensed matter*, Oxford Science Publications, 1986.
- Schiff L. I., *Quantum Mechanics*, McGraw-Hill Kogakusha Ltd., 1955.
- Sears V. F., *Physics Reports*, vol. 141, sec. 5, 1986, p. 281 – 317.
- Sears V. F., *Neutron Optics*, Oxford University Press, 1989.
- Squires G. L., *Introduction to the theory of thermal neutron scattering*, Dover Publications Inc., 1978.
- Van Hove L., *Physical Review*, vol. 95, 1954, p. 249.
- Windsor C. G., *Pulsed Neutron Scattering*, London: Taylor and Francis, 1981.
- Willis B. T., Carlile C. J., *Experimental Neutron Scattering*, Oxford University Press, 2009.
- Fitter J., Gutberlet T., Katsaras J., *Neutron scattering in Biology Techniques and Applications*, Springer, 2006.
- Liang L., Rinaldi R., Schober H., *Neutron Applications in Earth, Energy and Environmental Sciences*, Springer, 2009.
- Marshall W., Lovesey S., *Theory of Thermal Neutron Scattering*, Clarendon, Oxford, 1971.
- AA. VV., *Methods of Experimental Physics*, vol. 23 A, B, C (Neutron Scattering), Ed. da K. Sköld e D.Price, Academic Press, London, 1987.
- AA. VV., *Neutron and synchrotron radiation for condensed matter studies*, HERCULES course, vol. I and II, Ed. by J. Baruchel et al., Springer-Verlag, Berlin, 1993 & Les editions de Physique, Les Ulis, 1993

Ringraziamenti

Vorrei ringraziare tutte le persone che mi hanno seguito e aiutato nel percorso di studio e di vita, ma che non riuscirò a citare direttamente nel testo.

Un ringraziamento particolare va a tutti i docenti della Scuola Italiana di Spettroscopia Neutronica, che mi hanno permesso di vivere un'esperienza entusiasmante e mi hanno stimolato alla *voglia di sapere*. Ringrazio Alessio de Francesco, Eleonora Guarini e Claudia Mondelli per aver avuto la volontà e la pazienza di organizzare le Giornate Didattiche 2015, Andrea Orecchini per avermi dato ottimi consigli durante il corso e Andrea Piovano per essere stato disponibile nel corso dell'esperimento effettuato all'ILL.

Vorrei ringraziare il professore Federico Boscherini, che mi ha incoraggiato a partecipare al progetto della SISN e mi ha aiutato nel processo di stesura della tesi.

I ringraziamenti più sentiti vanno ai miei genitori:

- ringrazio di cuore la mia mamma che mi ha sempre stimolato a dare il meglio di me in ogni cosa che ho fatto, mi ha sempre permesso di vivere serenamente, malgrado le difficoltà della vita, e non mi ha mai fatto mancare il suo amore smisurato;
- ringrazio il mio papà per il sostegno che mi ha offerto negli anni della vita accademica.

Ringrazio infinitamente Sara Zaia per il costante supporto e la pazienza che ha avuto nei momenti di difficoltà, e per l'aiuto che mi ha offerto nei momenti di maggiore necessità. Il suo amore è stato un balsamo per le mie ferite nei momenti più bui e gioia nei momenti di serenità.

Tra tutti i compagni dei miei corsi di studio, meritano un ringraziamento speciale Borys Doronin e Dario Lo Buglio che ho apprezzato per le persone che sono e che sono fiero di chiamare amici.

Ringrazio tutti i compagni del mio gruppo sportivo del Parkour che hanno vissuto con me le emozioni più intense che offre questo sport, e che hanno instaurato con me un legame forte e disinteressato. In particolare vorrei ringraziare Diego Mendez, amico e modello in ambito sportivo e nella vita.

Infine vorrei ringraziare tutti coloro che hanno lasciato il segno nella mia vita, entrando a farne parte anche solo per un breve periodo. In particolare, ringrazio per la buona compagnia e il supporto offertomi dai compagni del progetto Giornate Didattiche 2015, e un ringraziamento speciale va ad Andrea Tummino e Alfredo Brugioni che mi hanno costantemente aiutato nel corso del progetto.