



**DESEMPENHO DO ESPECTRÔMETRO DE CRISTAL DE 3 EIXOS DO  
IEA: MEDIDA DAS RELAÇÕES DE DISPERSÃO DO COBRE**

C. Fuhrmann, R. Fulfero e L. A. Vinhas

PUBLICAÇÃO IEA 504  
COURP - AFN 63

ABRIL/1978

**DESEMPENHO DO ESPECTROMETRO DE CRISTAL DE 3 EIXOS DO  
IEA: MEDIDA DAS RELAÇÕES DE DISPERSÃO DO COBRE**

**C. Fuhrmann, R. Fufaro e L. A. Vinhas**

**CENTRO DE OPERAÇÃO E UTILIZAÇÃO DO REATOR DE PESQUISA**  
**Área de Física Nuclear**

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA**  
**SÃO PAULO - BRASIL**

**APROVADO PARA PUBLICAÇÃO EM MARÇO/78.**

**CONSELHO DELIBERATIVO**

**MEMBROS**

Klaus Reinach - Presidente  
Roberto D'Utra Vaz  
Helcio Modesto da Costa  
Ivano Humbert Marchesi  
Ademar Carvalho-I

**PARTICIPANTES**

Regina Elisabete Assvedo Garcia  
Fábio Gori

**SUPERINTENDENTE**

Rômulo Ribeiro Pironi

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA**  
Caixa Postal 11.049 (Pirineiros)  
Cidade Universitária "Armando de Salles Oliveira"  
**SÃO PAULO - BRASIL**

# DESEMPENHO DO ESPECTRÔMETRO DE CRISTAL DE 3 EIXOS DO IEA: MEDIDA DAS RELAÇÕES DE DISPERSÃO DO COBRE\*

C. Fuhrmann, R. Fulfero e L. A. Vinhas

## RESUMO

Com o objetivo de verificar o desempenho em estudo de fonons de Espectrômetro de Cristal de Três Eixos, recentemente construído no IEA, foram medidas as relações de dispersão de uma amostra de cobre monocristalina à temperatura ambiente. Foram determinadas as frequências para fonons se propagando ao longo das três direções de mais alta simetria do cristal,  $\{\xi 00\}$ ,  $\{\xi\xi 0\}$  e  $\{\xi\xi\xi\}$ . As medidas foram realizadas operando o Espectrômetro de Cristal de Três Eixos segundo o método do "Q constante" com perda de energia pelo nêutron. A excelente concordância com as frequências determinadas com precisão apresentadas na literatura para o cobre, indicam que o Espectrômetro do IEA está em condições para medir, futuramente, relações de dispersão inéditas. No presente trabalho são, também, apresentados a teoria de operação do espectrômetro e o cálculo pormenorizado das posições angulares para a detecção de grupos de nêutrons do cobre, com o instrumento operando pelo método do Q constante.

## I - INTRODUÇÃO

Os nêutrons térmicos de feixes emergentes de um reator nuclear são frequentemente usados como partículas de prova na investigação do comportamento dinâmico de sistemas condensados.

A técnica está baseada no fato dos nêutrons térmicos terem suas energias e momentos associados no mesmo intervalo de valores das energias e momentos associados com os movimentos térmicos dos átomos na matéria. Os estados dinâmicos do sistema em estudo podem ser observados facilmente a partir de processos de espalhamento de nêutrons por um sistema espalhador. A medida das transferências de energia e quantidade de movimento do nêutron ao sistema, ou vice versa, conduz diretamente ao conhecimento das quantidades correspondentes associadas com as excitações elementares da matéria, tais como fonons num cristal.

O estudo do comportamento dinâmico de estruturas cristalinas é uma das mais importantes aplicações da técnica de espalhamento inelástico de nêutrons.

Num cristal o campo de força presente no meio é de natureza periódica. Dessa modo só é possível ocorrer um número muito limitado de valores de transferência de energia para uma dada transferência de momento. Por outro lado, o conhecimento da orientação da amostra monocristalina em relação ao vetor de espalhamento e a obtenção dos dados experimentais das transferências de momento e energia - as quais estão associadas com uma intensidade relevante dos nêutrons espalhados, os chamados "grupos de nêutrons" - permitem a determinação direta das relações de dispersão entre frequência e vetor de onda para os modos normais de vibração dentro do cristal. Análises complementares dos dados de intensidade conduzem a uma identificação correta do ramo, polarização e fator de população dos fonons associados com um determinado modo normal de vibração do cristal a uma dada

(\*) Este trabalho foi parcialmente financiado pela Comissão Nacional de Energia Nuclear.

C. Fuhrmann - TNS/EN  
R. Fulfero - TNS/EN  
L. A. Vinhas - TNS/EN

temperatura. Essas peças de informação podem ser utilizadas na dedução dos valores das constantes de forças interatômicas, do alcance dessas forças dentro do cristal e de outras importantes propriedades da dinâmica da matéria em sua forma cristalina.

Um espectrômetro de cristal de 3 eixos para nêutrons tem seu princípio de operação baseado no espalhamento coerente inelástico de nêutrons térmicos por uma amostra monocristalina, que é a técnica mais adequada para a determinação experimental das relações de dispersão.

Como parte do programa sobre espalhamento inelástico de nêutrons, desenvolvido pela Área de Física Nuclear do IEA, foi construído em nosso Instituto um espectrômetro de cristal de 3 eixos, cujos pormenores de projeto, construção e características já foram descritas em publicação anterior<sup>(3)</sup>.

O presente trabalho descreve especificamente os procedimentos efetuados para verificar o desempenho do instrumento e colocá-lo em condições de operação, abordando de forma pormenorizada o método de medida e a sua aplicação ao caso da obtenção de dispersão de uma amostra monocristalina de cobre usada como padrão.

## II – O MÉTODO EXPERIMENTAL

### II.1 – O Espalhamento Coerente Inelástico: Caso de Troca de um Fônion

Dois condições essenciais controlam a grandeza de secção de choque coerente de um fônion para o espalhamento de nêutrons térmicos por um monocristal, no qual os átomos vibram harmonicamente sobre suas posições de equilíbrio<sup>(2)</sup>. São as equações de conservação de energia e momento:

$$E_0 - E_1 = \pm \hbar \omega(\mathbf{q}) \quad (1)$$

$$\vec{Q} = \vec{k}_0 - \vec{k}_1 = \vec{G} + \vec{q} \quad (2)$$

com  $E = \hbar^2 k^2 / 2m$  e  $k = 2\pi/\lambda$

onde  $m$ ,  $E$ ,  $k$  e  $\lambda$  representam a massa do nêutron, energia, vetor de onda e comprimento de onda de Broglie respectivamente; o vetor  $\vec{G} = 2\pi \vec{\tau}$  e o vetor da rede recíproca (já inclui o fator  $2\pi$ ); o  $\vec{Q}$  é chamado vetor transferência de vetor de onda.

Além disso, sabe-se que fônions obedecem a uma relação de dispersão  $\omega = \omega(\mathbf{q})$ , a qual é governada pelo sistema de forças interatômicas no cristal.

As equações (1) e (2) podem ser satisfeitas quando são escolhidas certas condições experimentais nas quais predominam processos onde o nêutron espalhado cria (+) ou aniquila (-) um único fônion. Para esses casos um pico na contagem de nêutrons (grupo de nêutrons) corresponderá a um fônion de vetor de onda  $\vec{q}$  e frequência  $\omega(\mathbf{q})$ . O espalhamento coerente inelástico por um fônion não pode ocorrer para uma escolha arbitrária qualquer de  $\vec{Q}$  e  $\omega$ .

Consideremos o caso de um experimento num valor de  $\vec{Q}$  fixo que é facilmente visualizado quando representado num diagrama de rede recíproca, cuja a construção está descrita no Apêndice A.

### II.2 – O método do Q Constante

Este é o mais usado e importante método para operar um espectrômetro de cristal de 3 eixos,

uma vez que proporciona um controle completo sobre as variáveis naturais do sistema em estudo. Nesse método o  $\vec{Q} = \vec{k}_0 - \vec{k}_1$ , é mantido fixo para todos os pontos experimentais quando é efetuada a medida de um grupo de nêutrons, enquanto a frequência  $\omega$  é variada. Isto é muito útil para a realização da experiência, pois nesse caso há uma correspondência direta entre a intensidade medida e a parte essencial da seção de choque para o espalhamento coerente inelástico de um fonon. Outra razão importante é o fato do método do  $\vec{Q}$  constante ser o único a garantir a condição de um resultado experimental num valor de  $\vec{Q}$  pré-selecionado<sup>(2)</sup>, isto é, extremamente conveniente pois na maioria dos estudos sobre dinâmica de redes necessita-se efetuar análises e cálculos teóricos em termos de valores particulares de  $\vec{Q}$  (e portanto  $q$ ). O vetor  $\vec{Q}$  é pré-selecionado para corresponder a uma posição particular na rede recíproca, enquanto a frequência é variada sobre um intervalo também, pré-selecionado. Assim, um fonon de vetor de onda  $\vec{q}$  será indicado pela detecção de um grupo de nêutrons centrado na frequência do fonon.

O vetor de onda do fonon pode ser sempre referido à primeira zona de Brillouin por causa da periodicidade da relação de dispersão; isto é feito subtraindo de  $\vec{Q}$  o vetor apropriado da rede recíproca  $\vec{G}$  de modo a produzir o vetor de onda  $\vec{q}$  da primeira zona<sup>(3)</sup>. A figura 1 mostra o exemplo de um processo típico de espalhamento inelástico no plano (110) da rede recíproca; a construção satisfaz a condição de conservação de vetor de onda expressa pela equação (2). O vetor de onda  $\vec{q}$  do fonon está referido a zona (220) e está se propagando na direção [001].

Para variar a frequência no método do  $\vec{Q}$  constante é necessário que o ângulo de Bragg  $\theta_A$  do analisador, o ângulo de espalhamento  $\phi$  e o ângulo de orientação  $\Psi$  da amostra cristalina, sejam todos variados. Entretanto os ângulos devem observar determinadas relações entre si de modo a manter o valor de  $\vec{Q}$  constante.

### III — Relações entre os Vetores de Onda do Neutron e a Orientação da Amostra Cristalina

De um modo geral todos os espectrômetros de 3 eixos são construídos para trabalhar num plano horizontal, denominado plano de espalhamento, definido como aquele que contém os feixes incidentes e espalhados na amostra.

Considera-se um conjunto xyz de eixos ortogonais com x e y definindo o plano do espectrômetro. Os vetores de onda do neutron tornam-se  $\vec{k}_0 = (k_{0x}, k_{0y}, k_{0z} = 0)$  e  $\vec{k}_1 = (k_{1x}, k_{1y}, k_{1z} = 0)$  e a equação de conservação (2) pode ser escrita na forma:

$$k_{0x} - k_{1x} = Q_x = G_x + q_x \quad (3)$$

$$k_{0y} - k_{1y} = Q_y = G_y + q_y \quad (4)$$

As condições experimentais podem ser melhor visualizadas com o auxílio da figura 1 que mostra a relação entre os vetores de onda do nêutron e a orientação da amostra cristalina. A orientação pode ser definida pelo ângulo entre um eixo selecionado do cristal, por exemplo y, e a direção do vetor de onda do nêutron incidente  $k_0$ . A convenção de sinais frequentemente adotada<sup>(2)</sup> para espectrômetros com plano (x,y) horizontal, é aquela em que  $+\Psi$  representa uma rotação horária de y com respeito à  $k_0$ , e  $+\phi$  implica numa deflexão horária de  $k_1$ , com respeito à  $k_0$ . Portanto, a construção vetorial na figura 1 corresponde a um valor negativo para  $\Psi$  e a um valor positivo para  $\phi$ . Com essa convenção as equações (3) e (4) podem ser expressas em termos dos ângulos do espectrômetro:

$$Q_x = k_0 \sin \Psi - k_1 \sin(\phi - \Psi) \quad (5)$$



$$Q_y = k_0 \cos \Psi - k_1 \cos (\phi - \Psi) \quad (6)$$

enquanto que a transferência de energia dada pela equação (1) pode ser escrita na forma:

$$\hbar \omega = \frac{\hbar^2 (k_0^2 - k_1^2)}{2m} \quad (7)$$

Porém, outra condição adicional torna-se necessária para especificar completamente qualquer ponto experimental, uma vez que existem três relações apenas, equações (5), (6), (7) entre as quatro experimentais  $k_0$ ,  $k_1$ ,  $\phi$  e  $\Psi$ . A condição adicional adotada para o espectrometro do IEA é a escolha num valor fixo e conhecido para  $k_0$ .

Expressão para  $\Psi$ :

A partir da equação (5), tem-se:

$$Q_x = -k_0 \sin \Psi - k_1 [\sin \phi \cos \Psi - \cos \phi \sin \Psi]$$

ou

$$\cos \Psi = \frac{k_1 \cos \phi \sin \Psi - k_0 \sin \Psi - Q_x}{k_1 \sin \phi} \quad (8)$$

A partir da equação (6), tem-se:

$$Q_y = k_0 \cos \Psi - k_1 [\cos \phi \cos \Psi + \sin \phi \sin \Psi],$$

ou

$$\cos \Psi = \frac{Q_y + k_1 \sin \phi \sin \Psi}{k_0 - k_1 \cos \phi} \quad (9)$$

Iguando as expressões (8) e (9),

$$(k_1 \cos \phi \sin \Psi - k_0 \sin \Psi - Q_x) (k_0 - k_1 \cos \phi) = (Q_y + k_1 \sin \phi \sin \Psi) k_1 \sin \phi$$

ou

$$Q_x k_1 \cos \phi - k_0 Q_x - Q_y k_1 \sin \phi = k_1^2 \sin^2 \phi \sin \Psi + k_1^2 \cos^2 \phi$$

$$\sin \Psi + k_0^2 \sin \Psi - 2 k_0 k_1 \cos \phi \sin \Psi$$

de onde obtém-se

$$\sin \Psi = \frac{RQ_x (k_1 \cos \phi - k_0) - Q_y k_1 \sin \phi}{k_0^2 + k_1^2 - 2 k_0 k_1 \cos \phi} \quad (10)$$



Pode-se notar um fator de escala R multiplicando o  $Q_x$  na equação (10). Pois, como pode ser visto na figura 1, o valor limite da primeira zona de Brillouin no eixo x é maior do que no eixo y; assim, de modo a representar um ponto da rede recíproca com uma mesma unidade de notação, é obrigatório o uso de um fator de escala multiplicando o  $Q_x$ . O R é dado por:

$$R = \frac{d_{001}}{d_{110}} = \frac{a}{a\sqrt{2}} = \sqrt{2}$$

Expressão para  $\phi$ :

Obtém-se graficamente, a partir da figura 1

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

mas

$$Q_x^2 + Q_y^2 = Q^2$$

então

$$\cos \phi = \frac{k_0^2 + k_1^2 - R^2 Q_x^2 - Q_y^2}{2 k_0 k_1} \quad (11)$$

Portanto, para calcular os ângulos  $\Psi$  e  $\phi$  para uma determinada posição da rede recíproca, por meio das equações (10) e (11), necessita-se ter inicialmente os valores de  $k_0$  e  $k_1$ .

### III.1 – Determinação de $k_0$

A energia incidente fixa  $E_0$  é obtida por meio da reflexão de Bragg dos planos (111) de um cristal de cobre usado como monocromador. O respectivo comprimento de onda, dado pela Equação (B<sub>1</sub>) do apêndice B, foi determinado por ajuste de mínimos quadrados aos picos de difração do Níquel em pó usado como padrão por ter a estrutura cristalina e o parâmetro da rede conhecidos com precisão. Utilizando o espectrômetro na forma de um difratômetro, isto é, com o braço do analisador alinhado com o braço do 2º eixo, foi medido o diagrama de difração, tendo sido determinado o valor  $\lambda_0 = 1.4363 \text{ \AA}$ . A partir desse valor calcula-se o ângulo fixo  $2\theta_M = 40.2230^\circ$  pelo qual o cristal monocromador Cu(111) extrai o feixe incidente do feixe polienergético emergente do reator.

A partir da equação (B<sub>1</sub>) determina-se  $E_0 = 0.039708 \text{ eV}$ , ou (apêndice B) em unidades de frequência  $\nu_0 = 9.605 \text{ THz}$ . Para o nosso caso: determinação das relações de dispersão de uma amostra de cobre, escreve-se a partir da equação (B4).

$$k_0^2 = \frac{(3.815)^2}{19.786} \nu_0 \text{ (THz)}$$

$$k_0 = 2.619 \text{ \AA}^{-1}$$

### III.2 – Determinação de $k_1$

O objetivo do trabalho é efetuar a verificação de desempenho do Espectrômetro por meio da

medida da relação de dispersão de uma amostra de cobre monocristalina, para a qual existem frequências bem determinadas experimentalmente, em certas direções de simetria do cristal<sup>(4,6)</sup>.

Portanto, o interesse está em efetuar medidas de grupos de nêutrons em intervalos de frequências em torno de valores de  $\nu$  conhecidos a priori. O instrumento estará com melhor "performance" quanto mais os valores de  $\nu$ , agora obtidos, estiverem próximos dos valores encontrados na literatura obtidos com espectrometros de alta precisão.

Geralmente, faz-se variar o  $\nu$  de 0.1 em 0.1 THz em torno de um valor de  $\nu$  desejado. A partir de equação (B2), reescrita na forma:

$$\nu_1 = \nu_0 - \nu$$

ou com o  $\nu_0$  substituído

$$\nu_1 = 9.606 - \nu$$

determina-se um conjunto de valores de  $\nu_1$  (THz) e portanto de  $k_1$  (Å<sup>-1</sup>), por meio de equação (B4):

$$k_1^2 (\text{Å}^{-1})^2 = \frac{a^2}{19.786} \nu_1 (\text{THz})$$

ou

$$k_1 (\text{Å}^{-1}) = 0.812689 \sqrt{\nu_1 (\text{THz})} \quad (12)$$

Cada  $k_1$  do conjunto corresponde a nêutrons de determinada energia que serão difratados pelo cristal analisador e em seguida detectados.

Em nosso espectrômetro de 3 eixos está sendo utilizado um cristal analisador de alta refletividade<sup>(b)</sup>, de grafite pirolítico, com distância interplanar  $2d = 6.708$  Å. A seleção de nêutrons com um certo valor de  $k_1$ , numa determinada direção, é governada pela lei de Bragg:

$$\lambda_1 = 2d \sin \theta_A$$

ou, com

$$\lambda_1 = 2\pi/k_1,$$

$$\sin \theta_A = 2\pi/2dk_1,$$

onde  $\theta_A$  é o ângulo entre o feixe de nêutrons que está sendo analisado e os planos refletores do cristal.

O valor de  $k_1$  obtido de equação (12) está em unidades de  $2\pi/a$ ; portanto para substituí-lo diretamente na equação de Bragg deve-se, antes, alterá-la para:

$$\sin \theta_A = \frac{2\pi}{2d \cdot k_1 \cdot 2\pi/a}$$

$$\sin \theta_A = \frac{a}{2d \cdot k_1} \quad (13)$$

Uma vez que o valor de  $k_0$  é fixo pode-se calcular, por meio das equações (10), (11) e (13), as posições angulares  $\Psi$ ,  $\phi$  e  $2\theta_A$ , para cada valor de  $k_1$ . A medida da intensidade de nêutrons, em cada  $k_1$ , do conjunto gerado pela equação (12), irá compor a figura de um grupo de nêutrons, cuja centróide corresponde à frequência do fonon  $\nu$  numa dada posição ( $Q_x$ ,  $Q_y$ ) da rede recíproca.

A cada posição ( $Q_x$ ,  $Q_y$ ) está associado um vetor transferência de vetor de onda  $\vec{Q}$  que por sua vez, pela equação (2), corresponde a um fonon com vetor de onda  $\vec{q}$ . Se o procedimento anterior for repetido para vários valores de  $\vec{q}$ , numa certa direção de simetria do cristal, obtém-se a relação de dispersão  $\nu = \nu(q)$ .

#### IV – ORIENTAÇÃO DA AMOSTRA

De modo a ser possível medir os picos de fonons numa dada posição da rede recíproca da amostra, deve-se preliminarmente efetuar uma orientação do cristal em relação ao feixe incidente (vetor de onda  $k_0$ ). Para tanto, utilizam-se as expressões já apresentadas calculando as posições angulares no caso particular do espalhamento de Bragg por planos do cristal.

No caso do espalhamento coerente elástico (Bragg) de nêutrons por um sólido cristalino, as equações (1) e (2) são reescritos na forma:

$$\vec{Q} = \vec{k}_0 - \vec{k}_1 = \vec{G}$$

$$E = E_1$$

Sendo  $k_0 = k_1$ , expressões (10) e (11), para  $\Psi$  e  $\phi$ , reduzem-se a:

$$\sin \Psi = \frac{Q_y \sin \phi - R Q_x (\cos \phi - 1)}{2 k_0 (\cos \phi - 1)} \quad (14)$$

$$\cos \phi = \frac{2 k_0^2 - R^2 Q_x^2 - Q_y^2}{2 k_0^2} \quad (15)$$

onde  $R = \sqrt{2}$ .

Por meio da equação (13) calculou-se a posição angular  $2\theta_A = 24.71^\circ$ , onde o cristal analisador deve se posicionar para difratar, na direção do detector, os nêutrons espalhados elasticamente ( $k_0 = k_1$ ). A partir das equações (14) e (15) calculou-se as posições angulares correspondentes, as reflexões de Bragg nos planos (002), (111), (220), (222) e (113) da amostra de cobre. O resultado dos cálculos está mostrado na Tabela I.

A construção vetorial para a reflexão de cada plano pode ser vista na figura 2. O desenho de  $k_0 = k_1 = 2.519 \text{ \AA}^{-1}$  foi feito considerando a escala de construção da rede recíproca, onde  $2\pi/a = 4 \text{ cm}$ , marcando o módulo do vetor igual a  $10.076 \text{ cm}$ .

Tabela 1

Plano	$Q_x$	$RQ_x$	$Q_y$	$(RQ_x)^2$	$Q_y^2$	$\phi$	$\Psi$
002	0	0	2	0	4	46.78	- 66.61
111	1	$\sqrt{2}$	1	2	1	40.21	-124.62
220	2	$2\sqrt{2}$	0	8	0	68.31	-145.84
222	2	$2\sqrt{2}$	2	8	4	86.88	-101.30
113	1	$\sqrt{2}$	3	2	9	82.34	- 74.07

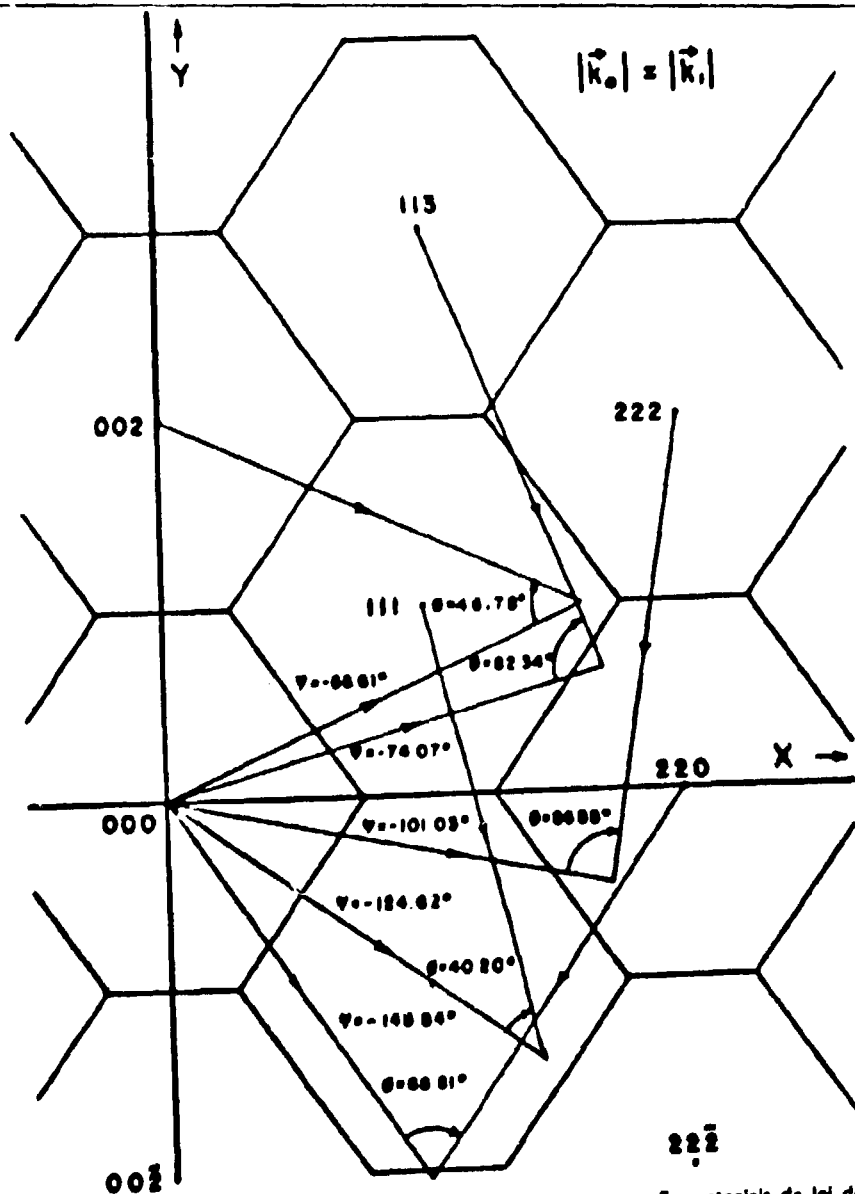


Figura 2 - Plano (110) da rede recíproca do cobre com as construções vetoriais da lei de Bragg para os diversos planos listados na tabela 1.

O cristal de cobre usado como amostra possui forma cilíndrica e está orientado com o eixo de simetria  $\langle 110 \rangle$  na direção longitudinal. Para efetuar as medidas das reflexões de Bragg colocou-se o cristal na posição vertical com o eixo passando pelo centro da mesa goniométrica da amostra.

Uma vez identificada a reflexão de um dos planos, ajustou-se a posição zero na mesa de modo a tornar possível a leitura direta dos ângulos  $\phi$  e  $\Psi$  relativamente à posição dos outros planos. Os feixes de nêutrons, como  $k_0 = k_1$ , difratados por espelhamento de Bragg em cada plano discriminado na Tabela I, foram identificados experimentalmente com a amostra de cobre, tendo sido conseguida ótima reprodutibilidade, obtendo-se um máximo de intensidade para cada reflexão exatamente nas posições angulares calculadas.

Esses resultados revelam a consistência das equações e parâmetros usados, bem como a precisão de movimentos do Espectrômetro de 3 eixos.

## V – CÁLCULO DE POSIÇÕES ANGULARES PARA MEDIDA DE UM "GRUPO DE NÊUTRONS", NUM PONTO $(Q_x, Q_y)$ DA REDE RECÍPROCA

Para ilustrar, apresentaremos o cálculo das posições angulares para a detecção de um grupo de nêutrons no cobre, correspondente a um fonon acústico se propagando transversalmente na direção  $[00\xi]$ , onde é definido como  $q/q_{\max}$ , sendo  $q_{\max}$  igual a distância que vai do centro ao limite da Zona de Brillouin. Será considerado o caso de um fonon com vetor de onda  $\vec{q}$  se referindo à zona em torno da posição  $(220)$ , para  $\xi = 0.35$ . Para o cálculo dos ângulos  $\Psi$ ,  $\phi$  e  $2\theta_A$  utiliza-se as equações (10), (11) e (13), como os valores  $Q_x = 2.0$  e  $Q_y = -0.35$ .

Para a posição  $\xi = 0.35$  na direção  $[00\xi]T$  da rede recíproca do cobre, existem medidas anteriores, efetuadas por outros pesquisadores<sup>(6)</sup>, que indicam a existência de uma frequência de fonon  $\nu = 2.64 \pm 0.04 TH_z$ . Por isso, variou-se a frequência de 0.1 em 0.1  $TH_z$ , em torno do valor de  $\nu$  acima, no intervalo de 1.6 a 3.6  $TH_z$ . Os resultados dos cálculos estão mostrados na Tabela II. A construção vetorial envolvendo os vetores  $k_0$  e  $k_1$  e os ângulos  $\phi$  e  $\Psi$  para a primeira e última posições de varredura no intervalo de frequências, podem ser vistas na figura 3.

Para cada  $\nu$ , o espectrômetro foi posicionado nos ângulos  $\Psi$ ,  $\phi$  e  $2\theta_A$  correspondentes, e em seguida foi feita a medida da intensidade de nêutrons, sempre para um valor pré-selecionado de contagens do monitor (80.000 cont.).

Os resultados experimentais em cada  $\nu$  do intervalo, que estão na Tabela II e na figura 4, revelam um pico de intensidade na posição  $\nu = 2.67 \pm 0.05$ . Esse valor concorda com o valor de frequência esperado, indicando que o espectrômetro está em condições de medir outras frequências na direção mencionada, de modo a completar a relação de dispersão  $\nu = \nu(q)$ .

## VI – RESULTADOS EXPERIMENTAIS

As relações de dispersão foram medidas à temperatura ambiente, para fonons se propagando ao longo de três direções de alta simetria do cristal: as direções  $[00\xi]$ ,  $[\xi\xi 0]$  e  $[\xi\xi\xi]$ . Numa rede recíproca de estrutura (f.c.c.), essas direções de simetria são geralmente marcadas como  $\Delta$ ,  $\Sigma$  e  $\Lambda$ , respectivamente. Os procedimentos experimentais e as interpretações teóricas ficarão bastante simplificados se as considerações sobre as relações de dispersão forem restringidas somente a essas direções de simetria<sup>(7)</sup>.

As frequências dos modos normais observadas experimentalmente e os vetores de onda para fonons se propagando nas direções  $\Delta$ ,  $\Sigma$  e  $\Lambda$  estão listados na Tabela III, onde o vetor de onda está expresso em termos da quantidade  $\xi = q/q_{\max}$ , chamada vetor de onda reduzido.

Foram medidos somente os fonons acústicos, de frequências mais baixas, que se propagam de forma transversal ou longitudinal relativamente às direções de simetria

Tabela II

Posicionamento do Espectrômetro para Medida de um Grupo de Nêutrons

Frequência do Fonon $\nu$ (THz)	Vetor de Onda do N. Esp. $k_1$ ( $\text{\AA}^{-1}$ )	$2\theta_A$	$\Psi$	$\Psi$	Conta- gens: N	Erro Estat. $\sqrt{N}$
1.6	2.299	27.10°	72°22'08"	212°42'08"	249	16
1.7	2.285	27.27°	72°35'30"	213°02'10"	234	15
1.8	2.270	27.46°	72°49'54"	213°23'38"	234	15
1.9	2.258	27.63°	73°03'22"	213°43'36"	234	15
2.0	2.241	27.83°	73°17'49"	214°04'58"	262	16
2.1	2.228	28.02°	73°32'18"	214°26'20"	281	17
2.2	2.212	28.21°	73°45'51"	214°46'16"	248	16
2.3	2.197	28.40°	74°00'24"	215°07'33"	288	17
2.4	2.181	28.61°	74°15'57"	215°30'15"	358	19
2.5	2.166	28.81°	74°30'35"	215°51'30"	451	21
2.6	2.151	29.02°	74°45'15"	216°12'44"	624	25
2.7	2.136	29.23°	74°59'57"	216°33'57"	670	26
2.8	2.120	29.45°	75°15'41"	216°56'32"	547	23
2.9	2.104	29.68°	75°31'27"	217°19'08"	414	20
3.0	2.089	29.91°	75°48'17"	217°40'14"	322	18
3.1	2.073	30.14°	76°02'10"	218°02'45"	240	15
3.2	2.057	30.38°	76°18'08"	218°25'14"	280	17
3.3	2.041	30.63°	76°34'05"	218°47'42"	231	15
3.4	2.024	30.88°	76°51'08"	219°11'32"	236	15
3.5	2.008	31.14°	77°07'14"	219°33'57"	247	16
3.6	1.992	31.40°	77°23'24"	219°56'20"	233	16

Fonon Acústico Propagando-se na Direção  $[00\xi]$  TVetor de Onda Reduzido  $\xi = \frac{q}{q_{\max}} = 0,35$

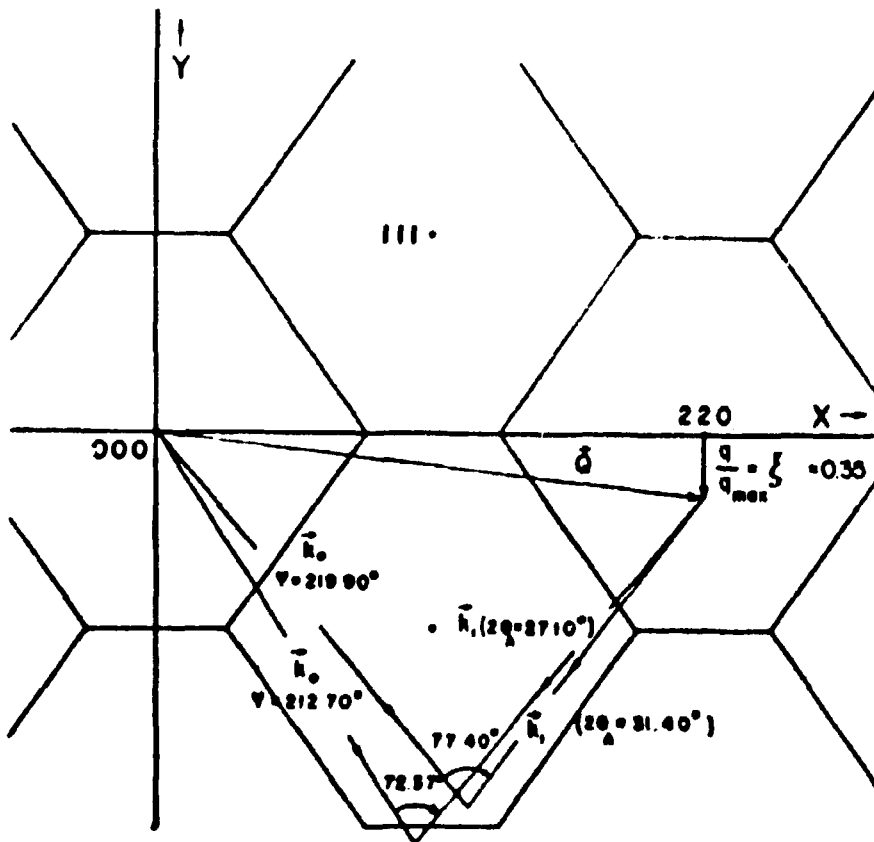


Figura 3 - Plano (110) da rede recíproca do cobre mostrando as construções vetoriais para as posições extremas da medida de um grupo de nêutrons realizada pelo método do  $\vec{Q}$  constante. O exemplo mostrado é referente a determinação da frequência de um fonon transversal à direção [001].

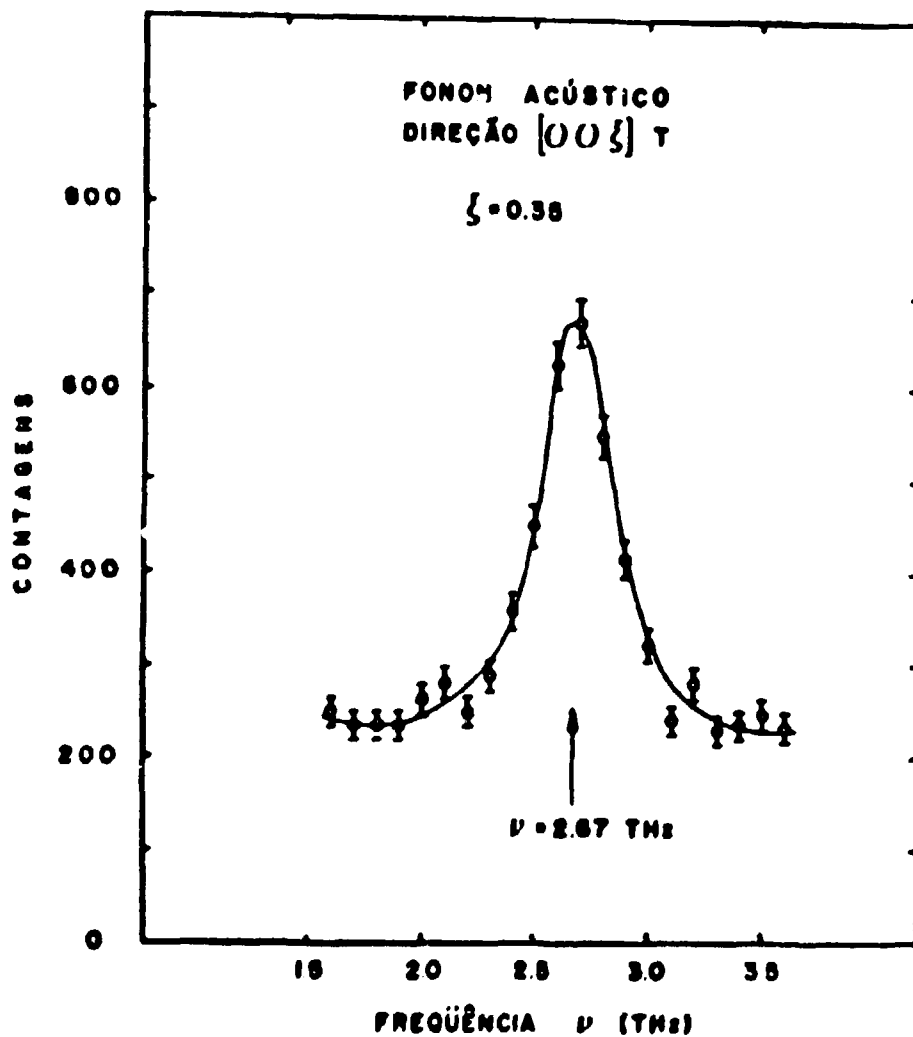


Figura 4 - Um grupo de nêutrons típico obtido pelo método do  $\vec{Q}$  constante (para um fonon acústico se propagando transversalmente à direção  $[00\xi]$ ).



Os valores de  $\nu$  obtidos experimentalmente no presente trabalho, estão comparados na Tabela III com os valores obtidos em trabalhos anteriores: por Svenson et alii [referência (6)] e por Nicklow et alii [referência (4)].

Tabela III  
Frequências dos Modos Normais (em Unidades de THz) para as Direções  
de Simetria no Cobre à Temperatura Ambiente

DIREÇÃO $\Delta$	[00 $\xi$ ] T			
	Presente Trabalho (THz)	Svenson et alii <sup>(6)</sup> (T = 296K) (THz)	Nicklow et alii <sup>(4)</sup> (T = 298K) (THz)	
	0.20	1.60 $\pm$ 0.04	1.56 $\pm$ 0.04	1.60 $\pm$ 0.02
0.35	2.67 $\pm$ 0.05	2.64 $\pm$ 0.04		
0.50	3.66 $\pm$ 0.06	3.62 $\pm$ 0.04	3.67 $\pm$ 0.03	
0.65	4.40 $\pm$ 0.10	4.34 $\pm$ 0.05		
0.80	4.84 $\pm$ 0.14	4.86 $\pm$ 0.07	4.88 $\pm$ 0.10	
[00 $\xi$ ] L				
0.20	2.30 $\pm$ 0.06	2.42 $\pm$ 0.07	2.44 $\pm$ 0.04	
0.40	4.45 $\pm$ 0.15	4.47 $\pm$ 0.07	4.50 $\pm$ 0.05	
DIREÇÃO $\Sigma$	[ $\xi\xi$ ] T <sub>2</sub>			
	0.30	3.34 $\pm$ 0.10	3.37 $\pm$ 0.04	3.41 $\pm$ 0.03
	[ $\xi\xi$ ] L			
	0.20	3.68 $\pm$ 0.08	3.70 $\pm$ 0.08	3.67 $\pm$ 0.03
0.40	6.05 $\pm$ 0.15	5.97 $\pm$ 0.08	6.00 $\pm$ 0.10	
0.60	6.40 $\pm$ 0.15	6.38 $\pm$ 0.12	6.35 $\pm$ 0.15	
DIREÇÃO $\Lambda$	[ $\xi\xi\xi$ ] T			
	0.20	1.96 $\pm$ 0.06	1.87 $\pm$ 0.06	1.89 $\pm$ 0.06
	0.30	2.65 $\pm$ 0.12	2.66 $\pm$ 0.06	2.69 $\pm$ 0.05
	0.40	3.20 $\pm$ 0.18	3.17 $\pm$ 0.07	3.21 $\pm$ 0.07

A qualidade dos grupos de nêutrons observados depende do particular ramo da relação de dispersão em estudos. Em geral, os fonons transversais são mais intensos e melhor focalizados do que os longitudinais, sendo considerados mais precisos. Os dados para a direção  $[00\ \xi\ T]$  foram particularmente fortes e bem definidos em comparação com dados de outras direções. Em alguns casos foram medidos alguns picos não muito simétricos e de baixa intensidade, tendo máximos somente de ordem do dobro da radiação de fundo.

São diversas as razões que provocam incertezas nas frequências medidas. A principal delas é a dificuldade existente na determinação do pico do grupo de nêutrons, nos casos onde o pico é pobremente definido por causa da excessiva largura, falta de simetria e alto background. Analisando os resultados experimentais, verificou-se que no melhor dos picos medidos consegue-se estimar um erro próximo a 2,5% e no caso mais desfavorável não ultrapassa 6,0%. Em média tem-se um erro próximo a 3,0%. O erro em cada frequência foi obtido marcando, na ordenada da figura de pico, o ponto onde a intensidade cai até 10% do valor máximo. Dessa forma foram determinados os erros na Tabela III.

As incertezas provenientes de flutuações estatísticas, as quais afetam a reprodutibilidade dos dados, foram estimados efetuando por mais de uma vez medidas de um mesmo pico de fonon e tentando notar qualquer desvio na frequência observada. Por esse procedimento não foi revelado nada de significativo, concluindo-se que o erro proveniente dessa fonte pode ser estimado ser menor que 2%.

Os resultados experimentais da Tabela III estão colocados em gráfico na Figura 5, podendo ser notada a boa concordância das frequências observadas com os valores anteriormente obtidos por outros autores.

À vista do exposto pode-se considerar que o Espectrometro de 3 Eixos do IEA está com suas características operacionais inteiramente determinadas e mostrou-se suficientemente preciso para ser considerado apto a determinação experimental de relações de dispersão inéditas em materiais de interesse.

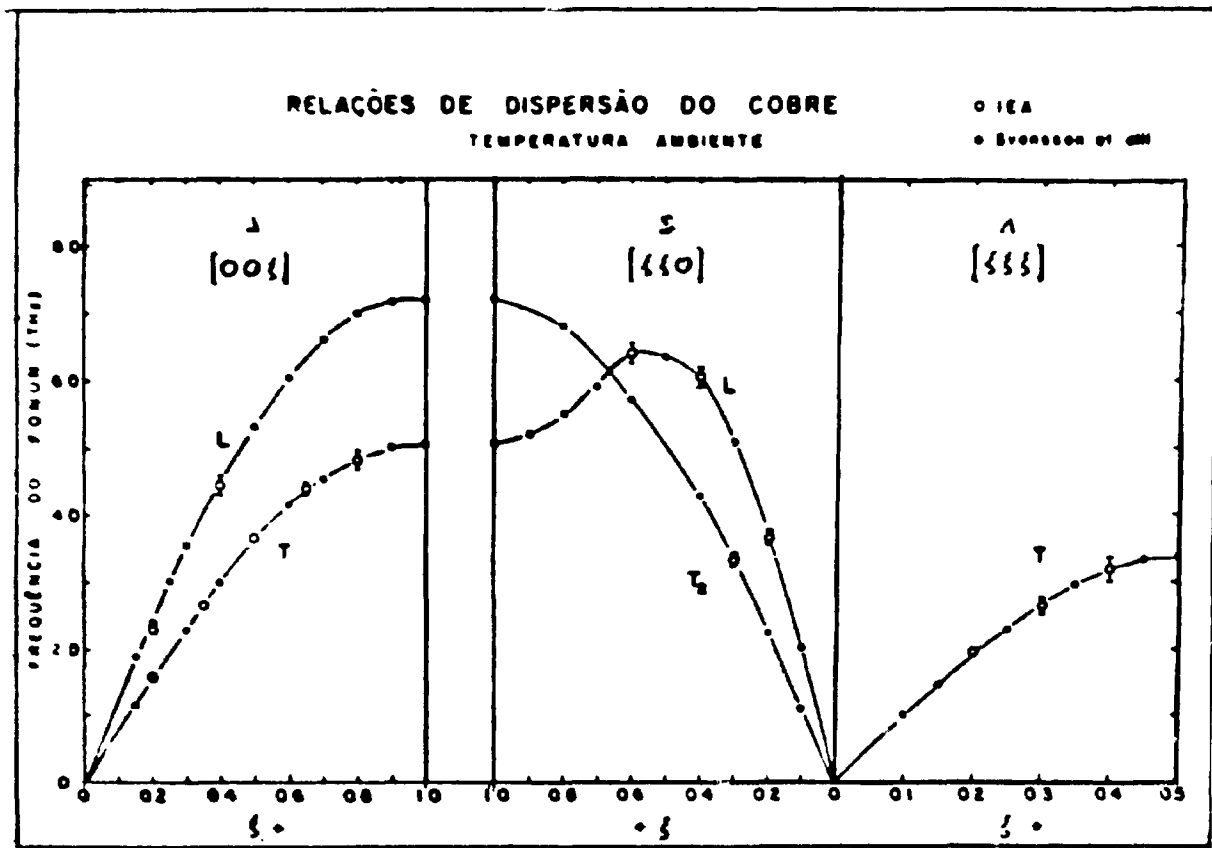


Figura 5 - Relações de dispersão do cobre à temperatura ambiente para as três direções de maior simetria. Os resultados experimentais obtidos neste trabalho (círculos vazios) são comparados com os obtidos por Svensson et alii<sup>(6)</sup> (círculos cheios) e com curva teórica calculada nessa referência

## APÊNDICE A

### CONSTRUÇÃO DA REDE RECÍPROCA

A amostra a ser utilizada é um monocristal de cobre; desse modo o interesse está em construir a rede recíproca para um cristal cúbico de face centrada (f.c.c.) para o qual as distâncias interplanares são dadas por:

$$d_{hkl} = \frac{a}{(h^2 + k^2 + l^2)^{1/2}} \quad (A1)$$

onde  $a$ , constante da rede para o cobre<sup>(8)</sup> é igual a 3.615 Å e  $(hkl)$  são os índices de Miller da família de planos considerados.

A rede recíproca será construída no plano  $(110)$  do cristal. Para esse caso representa-se no eixo  $x$  os planos  $(220)$ ,  $(440)$ ,  $(660)$  etc., e no eixo  $y$  os planos  $(002)$ ,  $(004)$ ,  $(006)$  etc.

Em uma rede recíproca expandida<sup>(11)</sup> por um fator  $2\pi$  os pontos da rede ficam separados por uma distância  $2\pi/a$ . Para a construção da rede recíproca do cobre, foi escolhida uma escala arbitrária  $2\pi/a = 4$  cm e em seguida foram calculadas as posições dos pontos nos eixos:

#### EIXO Y

plano  $(001)$  - seria o primeiro ponto do eixo  $y$ , mas esta reflexão é proibida para cristais f.c.c. Da equação (3) calcula-se  $d_{001} = a$ ; isto implica que a distância da posição à origem seria  $2\pi/d_{001} = 2\pi/a = 4$  cm.

plano  $(002)$  - esta reflexão é permitida e correspondente à um ponto verdadeiro da rede recíproca. Sendo  $d_{002} = a/2$ , a distância da posição  $(002)$  a origem é igual a  $2\pi/d_{002} = 2 \cdot 2\pi/a = 8$  cm.

Portanto, os pontos permitidos  $(002)$ ,  $(004)$ ,  $(006)$ , etc., distam entre si por 8 cm no eixo  $y$  da rede recíproca.

#### EIXO X

plano  $(110)$  - esta reflexão é proibida, mas estaria a uma distância da origem igual a  $2\pi/d_{110} = \sqrt{2} \cdot 2\pi/a = 5.657$  cm., pois  $d_{110} = a/\sqrt{2}$ .

plano  $(220)$  - esta reflexão é permitida e corresponde a um ponto da rede; está distante da origem por  $2\pi/d_{220} = 2\sqrt{2} \cdot 2\pi/a = 11.314$  cm, uma vez que  $d_{220} = a/2\sqrt{2}$ .

Os pontos permitidos  $(220)$ ,  $(440)$ ,  $(660)$ , etc., distam entre si por 11.314 cm no eixo  $x$  da rede recíproca.

#### EIXO DIAGONAL (entre $x$ e $y$ )

plano  $(111)$  - é uma reflexão permitida. Os pontos permitidos nesse eixo distam entre si por uma distância igual a  $2\pi/d_{111} = \sqrt{3} \cdot 2\pi/a = 6.928$  cm, uma vez que  $d_{111} = a/\sqrt{3}$ .

A partir dessas coordenadas marca-se os pontos da rede recíproca do cobre no plano  $(011)$ . Representam-se os vetores  $k$  na rede, escolhendo nesta um ponto particular como sendo a

origem do espaço  $\vec{k}$ . Desenham-se vetores da origem a todos os outros pontos da rede e em seguida traçam-se planos que bissectam esses vetores perpendicularmente. O menor volume circunscrito por esses planos representará a primeira zona de Brillouin.

A figura 1 mostra a construção da rede recíproca para os planos (110) de um cristal de cobre, cúbico de face centrada; podem serem vistos os hexágonos correspondentes à primeira zona de Brillouin de cada ponto da rede.

## APÊNDICE B

### B.1 – Expressão para o Vetor de Onda do Nêutron

Da Teoria Ondulatória, escreve-se o comprimento de onda de Broglie associado ao nêutron.

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv}$$

onde  $p$  é o momento,  $m$  a massa e  $v$  a velocidade do nêutron. Em termos de energia, pode-se escrever:

$$\lambda^2 = \frac{h^2}{2m E}$$

Substituindo os valores de  $m$  e da constante de Planck  $h$ , fica-se com:

$$\lambda(\text{\AA}) = \frac{0.286}{\sqrt{E \text{ (ev)}}} \quad \text{ou} \quad E = \frac{(0.286)^2}{\lambda^2} \quad (\text{B1})$$

onde o comprimento de onda está em Angstrons ( $\text{\AA}$ ) e a energia em eletrôn-volts.

Lembrando que  $k = 2\pi/\lambda$ , obtém-se

$$E \text{ (ev)} = (0.286)^2 \frac{k^2}{(2\pi)^2}$$

onde a dimensão de  $k$  é  $\text{\AA}^{-1}$ .

### B.2 – Relação Entre $k_0$ e $k_1$ e a "Frequência" em THz

Da teoria do espalhamento inelástico de um fonon, retoma-se a equação (1) que representa a condição de conservação de energia:

$$E_0 - E_1 = \hbar\omega$$

com  $E_0$  e  $E_1$  em eletrôn-volts e  $\omega$  em rad/seg.

Sendo  $\omega = 2\pi\nu$ , com  $\nu$  em ciclos/seg ou Hz, escreve-se:

$$\frac{E_0}{2\pi\hbar} - \frac{E_1}{2\pi\hbar} = \nu$$

Colocando a expressão em termos de  $\nu$  fica-se com:

$$\nu_0 - \nu_1 = \nu \quad (\text{B2})$$

onde

$$\nu_0 = \frac{E_0}{2\pi\hbar} \quad \text{e} \quad \nu_1 = \frac{E_1}{2\pi\hbar}$$

Deve-se ajustar as unidades da energia para se ter a equação (B2) em unidades de THz (ou  $10^{12}$  Hz) que é a ordem de grandeza física para frequência de fônons.

Substituindo o valor de  $\hbar = 6.57928 \times 10^{-16}$  eV. seg. fica-se com:

$$\omega \text{ (rad/seg)} = 1.52 \times 10^{15} E \text{ (eV)},$$

pode-se escrever que 1 eV equivale a  $1.52 \times 10^{15}$  rad/seg. Ou, então, em frequência:

$$\nu \text{ (ciclos/seg} = \text{Hz)} = \frac{1.52}{2\pi} \times 10^{15} E \text{ (eV)}$$

$$\nu \text{ (Hz)} = 2.419 \times 10^{14} E \text{ (eV)}$$

ou

$$\nu \text{ (THz)} = 241.9 E \text{ (eV)}$$

pode-se escrever que 1 eV equivale a 241.9 THz. Voltando as expressões para  $\nu$ , reescreve-se:

$$\nu \text{ (THz)} = \frac{E \text{ (eV)}}{2\pi\hbar}, \quad \text{onde} \quad \frac{1}{2\pi\hbar} = 241.9$$

Substituindo o valor de E, dado pela equação (B1), tem-se:

$$\nu \text{ (THz)} = 241.9 \times (0.286)^2 / \lambda^2$$

ou

$$\nu \text{ (THz)} = 19.786 / \lambda^2$$

com  $\lambda$  em angstroms

Colocando-se  $\lambda$  em função de  $k$  ( $\text{\AA}^{-1}$ ),

$$\nu \text{ (THz)} = 19.786 k^2 / (2\pi)^2$$

e evidenciando  $k$ , escreve-se:

$$k^2 \text{ (\AA}^{-1}\text{)}^2 = \frac{(2\pi)^2}{19.786} \nu \text{ (THz)} \quad \text{(B3)}$$

Entretanto, para desenhar o vetor  $\vec{k}$  diretamente na rede recíproca deve-se exprimi-lo em unidades de  $2\pi/a$ , ou seja:  $k^2$  em unidades de  $(2\pi/a)^2$ ; para tanto divide-se a equação (B3) por esse valor e fica-se com:

$$k^2 = \frac{a^2}{19.786} \nu \text{ (THz)} \quad (\text{B4})$$

onde  $a$  é o parâmetro da rede da amostra monocristalina.



## ABSTRACT

With the purpose to check the performance of IEA Triple Axis Spectrometer, which construction was recently finished, dispersion relation curves for copper at room temperature have been measured. The frequencies of phonons propagating along the three major symmetry directions  $[\xi 00]$ ,  $[\xi\xi 0]$  and  $[\xi\xi\xi]$  have been determined. The measurements were carried out operating the Triple Axis Spectrometer in the "Q constant" mode at neutron energy loss. An excellent agreement could be observed between the results obtained in the present experiment and the accurate data for copper presented in the literature. In such way, we can conclude that the IEA Triple Axis Spectrometer is in good operational conditions and able to perform original experiments. In this report an outline of the theory of the spectrometer operation and details on the experimental procedure for the case of a triple axis spectrometer operating in the "Q constant" mode are also presented.

## AGRADECIMENTOS

Agradecemos ao Dr. Carlos B. R. Parente pelas valiosas sugestões nos trabalhos de orientação da amostra de cobre e, ao bacharel Raphael Liguori Neto quando da determinação do comprimento da onda incidente. Manifestamos, também, nossos agradecimentos à Comissão Nacional de Energia Nuclear pelo financiamento parcial deste trabalho e a Agência Internacional de Energia Atômica pelo fornecimento do cristal monocromador de cobre e parte do equipamento eletrônico utilizado na pesquisa.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. DEKKER, A. J. *Solid state physics*. Englewood Cliffs, Prentice-Hall, 1957. p.263.
2. DOLLING, G. The theory and practice of neutron inelastic scattering. In: CALIFANO, S. ed. *Lattice dynamics and intermolecular forces: course LV, International School of Physics "Enrico Fermi"*. New York, Academic Press, 1975. p.175-238.
3. FULFARO, R. et alii. *Projeto, construção e características de um espectrômetro de cristal de 3 eixos para nêutrons*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, maio 1977. (IEA-477; COURP-AFN 061).
4. NICKCLOW, R. M. et alii. Phonon frequencies in copper at 49 and 298°K. *Phys. Rev.*, 164(3)922-8, Dec. 1967.
5. RISTE, T. Oriented, graphite as a neutron monochromator. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Vienna. *Instrumentation for neutron inelastic scattering research: proceedings of a panel held in Vienna, 1-5 December 1969*. Vienna, 1970. p.91-104.
6. SVENSSON, E. C. et alii. Crystal dynamics of copper. *Phys. Rev.*, 155(3):619-32, Mar. 1967.
7. VERBIE, J. L. *Lattice dynamics of lithium hydride*. Los Alamos, N. Mex., Los Alamos Scientific Lab., Jul. 1967. (LA-3760).
8. WYCKOFF, R. W. G. *Crystal structures*. 2.ed. New York, Interscience, 1965. vol.1, p 10.

