

# Спектр частот тантала при температурах 293–2300 К

© В.А. Семенов, Ж.А. Козлов\*, Л. Крачун\*\*, Г. Матееску\*\*, В.М. Морозов,  
А.И. Опра\*, К. Опра\*, А.В. Пучков

Государственный научный центр РФ — Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского  
Обнинск, Калужская обл., Россия

\* Объединенный институт ядерных исследований,  
Дубна, Московская обл., Россия

\*\* Национальный институт физики и ядерных технологий им. Х. Холубея,  
Бухарест, Румыния

E-mail: semenov@ipre.ru

С помощью неупругого рассеяния медленных нейтронов впервые исследована температурная зависимость спектра частот тантала в области температур от комнатной до 2300 К. Измерение спектров неупругого рассеяния нейтронов при разных температурах выполнено на времяпролетном спектрометре ДИН-2ПИ (реактор ИБР-2, ОИЯИ, Дубна) с использованием высокотемпературного термостата TS3000К. Из измеренных спектров методом итераций определен спектр частот кристаллической решетки тантала при температурах 293, 1584 и 2300 К. С ростом температуры наблюдается общее смягчение частотного спектра и сглаживание особенностей, проявляющихся при комнатной температуре. Наблюдаемые изменения объясняются возрастанием роли эффектов ангармонизма колебаний в области высоких температур.

Исследования выполнены при финансовой поддержке Госкорпорации „Росатом“.

## 1. Введение

В последнее время заметно возрос интерес к исследованию структурно-динамических характеристик тугоплавких материалов в области высоких температур. В частности, с помощью рассеяния нейтронов были измерены дисперсионные кривые для титана (до 1293 К) [1], циркония (до 2095 К) [2], гафния (до 2073 К) [3] и др. Использование нейтронных методов в этом случае не только дает возможность получать информацию о материале на микроуровне, но и в силу более высокой проникающей способности нейтронов по сравнению с другими излучениями облегчает решение технических проблем, связанных с получением высоких температур на образце. В настоящей работе с помощью метода рассеяния медленных нейтронов исследовалась температурная зависимость плотности фононных состояний (спектров частот) тантала в интервале температур от комнатной до 2300 К. Эти исследования представляют не только научный, но и практический интерес, в частности, для расчета нейтронно-физических характеристик ядерных реакторов в области высоких температур, поскольку со спектрами частот связаны такие свойства материалов, как теплоемкость, теплопроводность, сечения рассеяния нейтронов и др. Измерения выполнены на спектрометре ДИН-2ПИ [4] реактора ИБР-2 (Дубна) с использованием для нагревания образца недавно запущенного высокотемпературного термостата TS3000К [5]. Исследования проводились в рамках программы совместных работ ЛНФ ОИЯИ (Дубна) и ГНЦ РФ ФЭИ (Обнинск).

Тантал является переходным металлом группы V Периодической системы элементов Менделеева. По температуре плавления он уступает только вольфраму, превосходя его по технологическим свойствам. В хими-

ческом отношении тантал самый устойчивый к коррозии материал из благородных металлов. Благодаря своим физико-химическим и технологическим свойствам он нашел широкое применение при производстве электронной аппаратуры, в ядерной энергетике, в химическом производстве, в медицине и т.д.

Температура плавления тантала 3270 К. При температуре свыше 2000 К тантал начинает улетучиваться. Температурный коэффициент линейного расширения (в интервале температур 293–1773 К) составляет  $8.0 \cdot 10^{-6}$ . Тантал имеет ОЦК-решетку с параметром  $a = 0.3296$  nm. Конфигурация внешних электронов атома  $5d^3 6s^2$ .

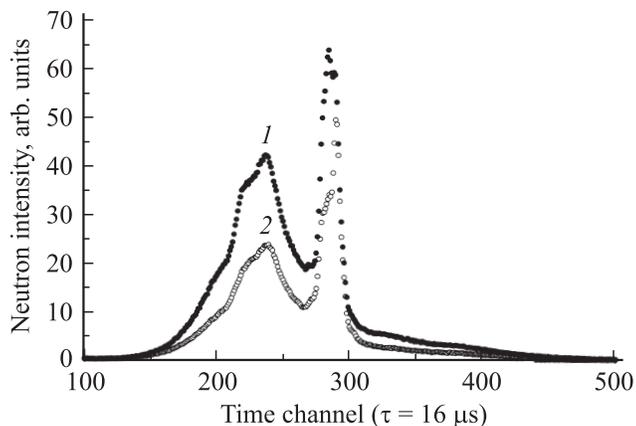
По отношению к нейтронам Та является практически полностью когерентно рассеивающим материалом ( $\sigma_s^{\text{coh}} = 6.00$  barns,  $\sigma_s^{\text{inc}} = 0.020$  barns). Сечение поглощения тантала сравнительно большое ( $\sigma_a = 20.6$  barns). Впервые исследование динамики тантала с помощью рассеяния медленных нейтронов было выполнено в работе [6], где были измерены дисперсионные кривые тантала при комнатной температуре для направлений симметрии  $[00\xi]$ ,  $[\xi\xi 0]$  и  $[\xi\xi\xi]$ . Оказалось, что они качественно похожи на дисперсионные кривые Nb [7], как и последние, имеют довольно сложный вид и ряд особенностей, отличающих тантал и ниобий от других переходных металлов. Теоретические попытки описать дисперсионные кривые тантала были предприняты в работах [6,8,9], которые указали на дальнедействующий характер межатомных сил. На основе дисперсионных кривых в работах [6,8] были вычислены спектры частот тантала при комнатной температуре. В „экспериментальном“ спектре частот, полученном в работе [6], наблюдаются два пика при передаче энергии  $\varepsilon$ , равной 11.5 и 18 meV ( $\varepsilon = |E_0 - E|$ , где  $E_0$  и  $E$  — энергии нейтрона до и после рассеяния), и особенность при  $\varepsilon \sim 9-10$  meV.

Низкоэнергетическая часть спектра аппроксимируется дебаевским распределением. Максимальная частота спектра отвечает передаче энергии  $\sim 21$  meV.

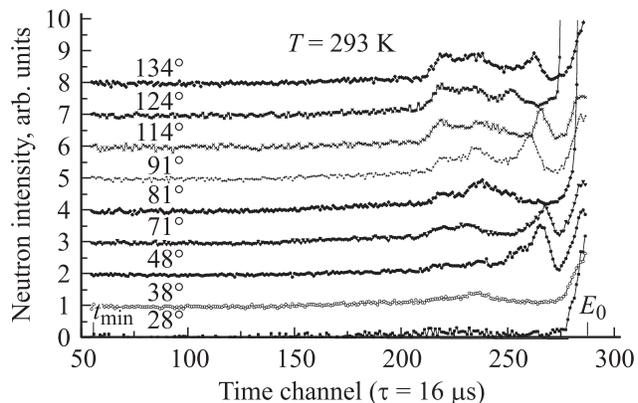
Информации об измерении температурной зависимости частотных спектров тантала в литературе не обнаружено. В то же время для некоторых переходных металлов, в частности ванадия и ниобия, такие измерения проводились в работах [10,11]. Они показали, что с ростом температуры в спектрах наблюдаются заметные изменения, которые могут носить, как в случае с ниобием, нерегулярный характер.

## 2. Эксперимент

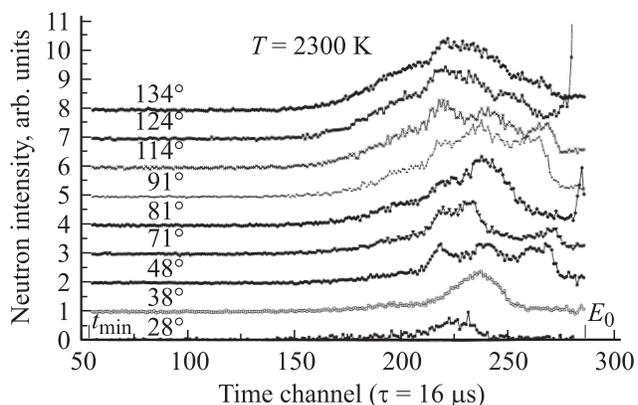
Измерения спектров рассеянных нейтронов для Ta были выполнены на времяпролетном спектрометре ДИН-2ПИ реактора ИБР-2 при температурах образца 293, 1584 и 2300 К. Термостат TS3000K во время эксперимента устанавливался в рабочую камеру спектрометра. Цилиндрический образец Ta с наружным диаметром 81 mm, высотой 104 mm и толщиной стенки  $\sim 1$  mm располагался на танталовом столике внутри цилиндрического танталового нагревателя с толщиной стенки 0.3 mm, который в свою очередь был окружен восемью цилиндрическими тепловыми экранами из листового тантала толщиной 0.1 mm. Начальная энергия нейтронов  $E_0$  равнялась 18.7 meV. Энергетическое разрешение  $\Delta E/E$  для этой энергии составляет 6–7%, а среднее пропускание танталового образца  $\sim 0.7$  по полному сечению  $\sigma_t$ . Спектры рассеянных нейтронов измерялись с использованием пятнадцати  $\text{He}^3$ -детекторов, расположенных под углами 28, 33, 38, 43, 48, 71, 76, 81, 86, 91, 114, 119, 124, 129 и  $134^\circ$ . При всех температурах измерения проводились в термостате с образцом и без образца. Для относительной нормировки детекторов использовалось измерение спектров ванадия при комнатной температуре. Наличие тепловых экранов и нагревателя, окружающих образец, влияет на поток



**Рис. 1.** Экспериментальные спектры рассеянных нейтронов в случае измерения с Ta при температуре 2300 К. 1 — термостат с образцом, 2 — термостат без образца.



**Рис. 2.** Экспериментальные спектры нейтронов, неупругорассеянных Ta при температуре 293 К. Углы рассеяния указаны на рисунке;  $t_{\min}$  соответствует моменту прилета монохроматических нейтронов на образец, а  $E_0$  — максимуму упругого пика. Спектры сдвинуты относительно друг друга по оси ординат.

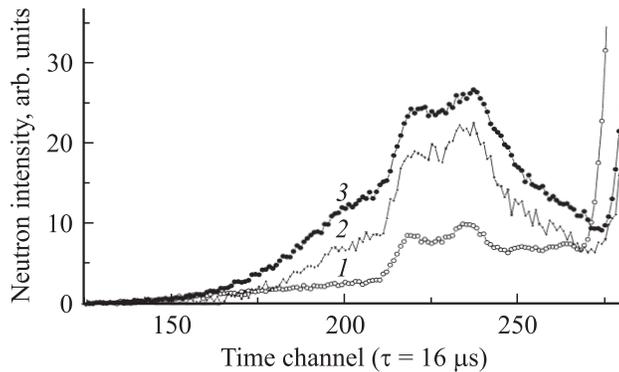


**Рис. 3.** То же, что на рис. 2, для температуры 2300 К.

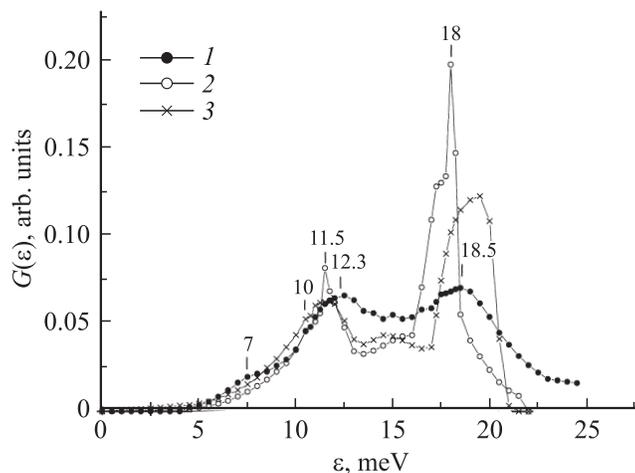
падающих и рассеянных нейтронов и создает дополнительный вклад в спектр рассеянных нейтронов. Из рис. 1, где показаны просуммированные по всем углам спектры рассеянных нейтронов для температуры 2300 К, видно, что в области неупругого рассеяния (канал 236, ширина канала  $\tau = 16 \mu\text{s}$ ) он достигает  $\sim 50\%$  от суммарного счета. Времяпролетные спектры нейтронов, рассеянных на тантале, полученные после вычитания рассеяния на термостате и относительной нормировки детекторов, показаны для девяти углов на рис. 2 и 3 для температур 293 и 2300 К соответственно. Упругому рассеянию отвечают пики с максимумами примерно в 286-м канале ( $\tau = 16 \mu\text{s}$ ). Слева от них в сторону меньших номеров каналов находятся спектры неупругого рассеяния с приобретением энергий нейтроном, которые и используются для получения спектров частот. Как видно, они имеют довольно сложную и нерегулярную временную и угловую зависимость, что связано с когерентным характером сечения рассеяния тантала.

### 3. Обработка данных и обсуждение результатов

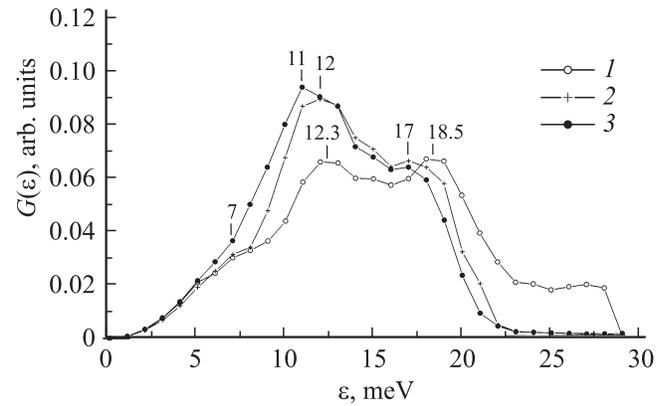
С учетом когерентного характера рассеяния нейтронов танталом обработка измерений проводилась в рамках метода Бредова–Оскотского [12]. Исходные спектры для восстановления спектров частот, полученные после вычитания рассеяния на термостате и просуммированные по 15 углам рассеяния, для всех температур приведены на рис. 4 ( $\tau = 16 \mu\text{s}$ ). Восстановление спектров частот проводилось методом последовательных итераций с использованием комплекса программ SLOWN, который позволяет учитывать эффекты многофононного и многократного рассеяния для заданной геометрии образца [13,14]. Полученный таким образом спектр частот для температуры 293 К на рис. 5 (кривая 1) сравнивается с данными, имеющимися в литературе [6,8]. В спектре видны два пика при  $\varepsilon \approx 12.3$  и  $18.5 \text{ meV}$  и плечо в районе  $7\text{--}8 \text{ meV}$ . Аналогичный характер (пики при  $11.5$  и  $18 \text{ meV}$ ) наблюдался и для спектра из работы [6]



**Рис. 4.** Экспериментальные спектры неупругорассеянных нейтронов для Та после вычитания рассеяния на термостате (просуммированы по всем углам рассеяния).  $T$ , К: 1 — 293, 2 — 1584, 3 — 2300.



**Рис. 5.** Плотность фоновых состояний (спектр частот) Та при комнатной температуре. 1 — данные настоящей работы, 2 — [6], 3 — [8].



**Рис. 6.** Плотность фоновых состояний (спектр частот) Та при температурах 293 (1), 1584 (2) и 2300 К (3).

(кривая 2), полученного из измерения дисперсионных кривых. Различие в соотношении интенсивностей пиков частично можно отнести на счет экспериментального разрешения. Наблюдаемая в спектре особенность около  $10 \text{ meV}$  в [6] не комментируется. Вероятнее всего, она появляется в результате аппроксимации низкочастотной части спектра дебаевским распределением. В расчетном спектре из работы [8] (кривая 3), который подгонялся под экспериментальные данные работы [6], никаких особенностей в области низких энергий не видно. Пики при  $\sim 12$  и  $\sim 18 \text{ meV}$  обусловлены поперечными и продольными колебаниями атомов тантала. Что касается плеча (кривая 1), то однозначного мнения о причинах его появления нет. Подобные особенности в низкочастотной области спектра частот переходных металлов отмечалось в литературе неоднократно, и даже были попытки их физической интерпретации [15–17]. Вместе с тем они могут быть обусловлены и причинами методического характера, связанными с процедурой получения информации в области малых передач энергии, где малое по величине неупругое рассеяние анализируется на фоне крыльев упругого пика и многократного рассеяния. На рис. 6 представлен спектр частот тантала для температур 293, 1584 и 2300 К. Как видно, с повышением температуры спектр частот трансформируется: происходит общее смягчение спектра и практически исчезает плечо в области низких энергий. Изменения в фоновом спектре, по всей видимости, обусловлены главным образом эффектами ангармонизма колебаний, которые с ростом температуры должны оказывать все большее влияние на спектр колебаний. Это влияние может носить сложный характер. Так, например, в работе [18] на примере  $\beta$ -циркония (ОЦК-решетка) показано, что взаимодействие ангармоничной продольной и поперечных ветвей в области температур до  $T/T_m \approx 0.75$  ( $T_m = 2123 \text{ K}$ ) приводит не только к общему смягчению и перенормировке фоновому спектру, но и к раздвоению пика поперечных колебаний. Подобные эффекты не описываются в рамках гармонических приближений.

Поэтому при их анализе необходимо учитывать эффекты ангармонизма колебаний.

#### 4. Заключение

Для практически важного тугоплавкого переходного металла тантала в широком интервале температур от комнатной до 2300 К впервые исследована температурная зависимость спектра частот колебаний кристаллической решетки. Наблюдаемые в спектре изменения могут быть объяснены возрастающей ролью эффектов ангармонизма при высоких температурах. Учитывая зависимость от спектра частот таких характеристик, как теплоемкость, теплопроводность, сечения рассеяния и др., полученные данные можно использовать в прикладных целях, в частности при вычислении нейтронно-физических характеристик ядерных реакторов и термодинамических функций материалов в широком диапазоне температур.

#### Список литературы

- [1] W. Petry, A. Heiming, J. Trampenau, M. Alba, C. Herzig, H.R. Schober, G. Vogl. Phys. Rev. B **43**, 10933 (1991).
- [2] A. Heiming, W. Petry, J. Trampenau, M. Alba, C. Herzig, H.R. Schober, G. Vogl. Phys. Rev. B **43**, 10948 (1991).
- [3] J. Trampenau, A. Heiming, W. Petry, M. Alba, C. Herzig, W. Miekeley, H.R. Schober. Phys. Rev. B **43**, 10963 (1991).
- [4] User guide / Ed. V.P. Sicolenko. Joint Institute for Nuclear Research, Dubna (1997). P. 31.
- [5] М. Ион, Ж.А. Козлов, Г. Матеску, И. Падуреану, В.А. Семенов, Л. Крачун, С.Н. Рыпеану, В.М. Морозов, А.И. Опря, К. Опря, А.В. Пучков. Сообщ. ОИЯИ. P.13-2008-66. Дубна (2008). 17 с.
- [6] A.D. Woods. Phys. Rev. **136**, A 781 (1964).
- [7] Y. Nakagava, A.D.B. Woods. Phys. Rev. Lett. **11**, 271 (1963).
- [8] O.P. Gupta, H.L. Kharoo, M.P. Hemkar. Pramana **11**, 111 (1978).
- [9] A.O.E. Animalu. Phys. Rev. B **8**, 3542; 3555 (1973).
- [10] P.D. Bogdanoff, B. Fultz, J.L. Robertson, L. Crew. Phys. Rev. B **65**, 014 303 (2001).
- [11] F. Guthhoff, B. Hennion, C. Herzig, W. Petry, H.R. Schober, J. Trampenau. J. Phys.: Cond. Matter **6**, 6211 (1994).
- [12] М.М. Бредов, Б.А. Котов, Н.М. Окунева, В.С. Оскотский, А.Л. Шах-Будагов. ФТТ **9**, 287 (1967); В.С. Оскотский. ФТТ **9**, 550 (1967).
- [13] Ю.В. Лисичкин, А.Г. Новиков, В.А. Семенов, С.И. Тихонова. Вопр. атом. науки и техники. Сер. Ядерные константы **3**, 42 53 (1981).
- [14] Ю.В. Лисичкин, А.Г. Довбенко, В.А. Ефименко, А.Г. Новиков, Л.Д. Смиреникина, С.И. Тихонова. Вопр. атом. науки и техники. Сер. Ядерные константы **2**, 33, 12 (1979).
- [15] C.M. Eisenhauer, I. Pelah, D.J. Hughes, H. Palevsky. Phys. Rev. **109**, 1046 (1958).
- [16] I. Pelah, R. Haas, W. Kley, K.N. Krebs, J. Peretti, R. Rubin. Inelastic scattering of neutrons in solids and liquids. IAEA, Vienna (1963). V. II. P. 155.
- [17] W. Glaser, F. Carvalho, G. Ehret. Inelastic scattering of neutrons. IAEA, Vienna (1965). V. 1. P. 99.
- [18] V. Trubitsin, S. Ostanin. Phys. Rev. Lett. **93**, 155 503-1 (2004).