

# Динамика атомов кислорода в системе внедрения Ta—O

© С.И. Морозов

Государственный научный центр РФ — Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского,  
249033 Обнинск, Калужская обл., Россия

E-mail: morozov@ipre.ru

(Поступила в Редакцию 31 мая 2005 г.)

Представлены результаты исследования динамики атомов кислорода в твердом растворе системы Ta—O. Определены энергии колебаний примесей внедрения O и получены константы атомного силового взаимодействия металл—примесь. На основе анализа экспериментальных результатов высказывается предположение о смещении атома кислорода из центра октаэдрического междоузлия кристаллической решетки. Показано, что энергия колебаний кислорода в тантале подчиняется общей для систем Me—O зависимости энергии локальных мод от расстояния переходный металл—примесь внедрения.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований и администрации Калужской области (проекты № 04-03-97217, № 01-02-96002 и частично проект № 01-03-96009).

PACS: 61.12.-q, 63.20.Pw

## 1. Введение

Динамика атомов *p*-элементов в твердых растворах внедрения (ТРВ) Me—X (X = O, N, C) на основе переходных металлов IVa и Va групп исследована методом неупругого рассеяния нейтронов (НРН) в значительно меньшей степени, чем динамика атомов водорода (см., например, работы [1–5] и ссылки в них). Это связано прежде всего с существенными трудностями при наблюдении локальных мод (ЛМ) *p*-элементов из-за их ничтожной (как правило) растворимости в переходных металлах при комнатной температуре и малого по сравнению с водородом сечения рассеяния тепловых нейтронов.

Основными чертами взаимодействия металл—примесь внедрения, проявляющимися в спектрах колебаний *p*-элементов, можно считать следующие: 1) *p*-элементы занимают октаэдрические междоузлия (ОМ) в решетках атомов металла; 2) константа взаимодействия ближайших атомов металл—примесь, как правило, в несколько раз превышает константу взаимодействия Me—Me (см., например, [3–5]); 3) зависимость энергии колебаний *p*-элемента от расстояния Me—X, взятого без учета локальных искажений вокруг примесного атома, носит общий характер для всех исследованных систем Me—X (Me = Ti, Zr, V, Nb; X = O, N [4]); 4) — в большинстве исследованных до сих пор систем структура спектра локальных колебаний (ЛК) примесного атома отражает локальную симметрию междоузлия, занимаемого примесным атомом [1–5].

Последнее свойство имеет ряд исключений. Например, в случае  $\alpha$ -твердого раствора кислорода в иттрии, решетка которого представляет собой почти идеальную гексагональную плотную упаковку,  $O_h$  симметрия ОМ, занимаемых кислородом, должна приводить к трехкратному вырождению ЛМ. Однако эксперимент обнаруживает расщепление спектра ЛК на два уровня:  $\varepsilon_1 \approx 50$  meV и  $\varepsilon_2 \approx 60$  meV [6]. Ранее аналогичное рас-

щепление наблюдалось для колебательного уровня водорода в Y—H [7] и затем в системах Lu—H и Sc—H [8].

Структура примесной полосы атомов кислорода в ОЦК-решетках переходных металлов также требует уточнений. Тетрагональная точечная симметрия ОМ в ОЦК-решетках должна приводить к расщеплению ЛК на высокочастотный синглет, поляризованный вдоль короткой оси октаэдра, и низкочастотный дублет, поляризованный в плоскости, перпендикулярной короткой оси октаэдра. Однако в отличие от системы V—O [1] в  $\alpha$ -твердых растворах кислорода в Ta и Nb энергетическое положение высокочастотной моды ЛК нельзя считать надежно установленным [9–11]. В более ранней работе [10] значение энергии высокочастотных колебаний кислорода в ниобии было определено как  $\hbar\omega_3 \approx 61$  meV. Для увеличения статистической точности результатов были проведены исследования системы Nb—O при  $T \approx 200^\circ\text{C}$  и получено значение  $\hbar\omega_3 \approx 84$  meV [11]. И в первом, и во втором случаях статистическая точность полученных результатов, по мнению автора, недостаточна для убедительной идентификации положения высокочастотной моды.

Возможные причины несоответствия формы спектра ЛК примесных атомов локальной симметрии занимаемых ими междоузлий могут быть связаны с тем, что позиция локализации примеси внедрения в некоторых решетках смещена из геометрического центра междоузлия. Эти обстоятельства делают актуальными дальнейшие исследования динамики примесей в решетках переходных металлов.

Исследование локализованных мод в системах Nb—O и Ta—O затруднено ввиду крайне низкой растворимости кислорода в них при комнатной температуре [12]. Достаточные для исследования концентрации примесей ( $\approx 2$ –3 at.%) достигаются при  $T \geq 1000^\circ\text{C}$ . В связи с этим исследование таких систем обычно проводится на пересыщенных ТРВ, полученных закалкой от высоких температур. Но и в этом случае наблюдение высокочастотных особенностей затруднено из-за их,

как правило, большой ширины и малой заселенности колебательных состояний. Кроме того, неравновесное распределение примесных атомов и/или их кластеризация заметно влияют на энергетическое положение и форму ЛМ. Спектр ЛК примеси весьма чувствителен к ее ближайшему окружению. Поэтому различия в способе приготовления и режимах термообработки образца приводят к существенным различиям экспериментально наблюдаемых значений высокочастотных мод (см., например, [10,11]). В настоящей работе исследования систем Ta–O предприняты с целью получения информации о динамике и локализации внедренных атомов O в решетке металла, а также о межатомном силовом взаимодействии и влиянии локальных смещений атомов на структуру спектра колебаний.

## 2. Приготовление образцов и обработка результатов

Образцы Ta–O готовились путем насыщения пластин тантала размером  $50 \times 20 \times 0.3$  mm кислородом из газовой фазы при  $T = 1100^\circ\text{C}$  и гомогенизирующего отжига в течение 5 h с последующей закалкой в масле. Рентгеновские исследования образцов показали, что кислород находится в твердом растворе и параметр решетки  $a = 3.314 \pm 0.002 \text{ \AA}$  соответствует составу  $3.077 \pm 0.002 \text{ at.}\%$  ( $\text{TaO}_{0.03}$ ) [12]. Это находится в хорошем согласии с количеством поглощенного газа, но несколько превышает значение, полученное по привесу образца. В дальнейшем мы используем среднее значение концентрации кислорода, полученное тремя методами и соответствующее составу  $\text{TaO}_{0.03}$ .

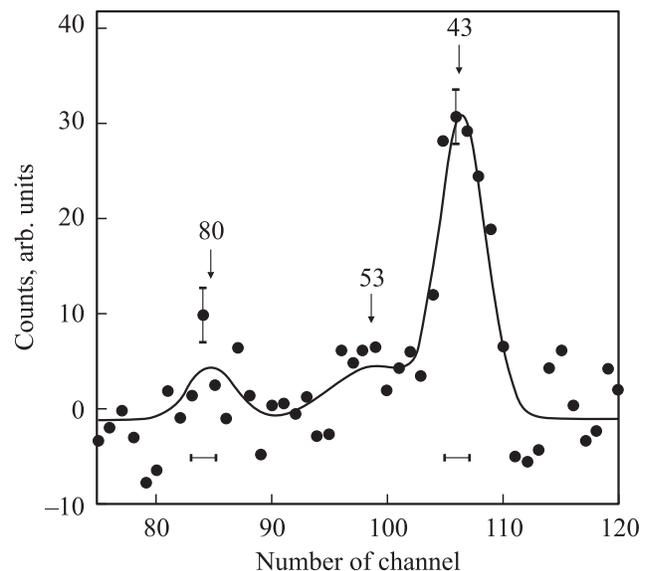
Нейтроноскопические исследования  $\text{TaO}_{0.03}$  проводились на спектрометре НРН прямой геометрии ДИН-2ПИ, установленном на реакторе ИБР-2 [13], в режиме приобретения нейтронами энергии. Кроме того, изучались также образцы исходного тантала, использовавшегося для приготовления сплава  $\text{TaO}_{0.03}$ . Все измерения проводились в одной геометрии. Образцы собирались в плоские пластины размером  $100 \times 100 \times 1$  mm, среднее пропускание которых по сечению рассеяния нейтронов составляло около 96%, что обеспечивало отсутствие заметного влияния процессов многократного рассеяния. Начальная энергия падающих на образец нейтронов составляла  $E_0 = 8.2 \text{ meV}$ . Рассеянные нейтроны регистрировались в диапазоне углов  $70\text{--}134^\circ$ . Разрешение прибора в области передач энергии  $\varepsilon = E - E_0 = 40\text{--}100 \text{ meV}$ , соответствующей области ЛМ атомов кислорода, изменялось от  $R \approx 4$  до  $\approx 12 \text{ meV}$ . Путем вычета фона быстрых нейтронов, учета коэффициента ослабления первичного и однократно рассеянного пучка нейтронов и эффективности детекторов из спектров НРН получались дважды дифференциальные сечения (ДДС) исследованных образцов Ta и  $\text{TaO}_{0.03}$ . Затем методом вычитания проводилась обработка в некогерентном приближении спектров ДДС до уровня парциальных спектров частот примесных атомов

кислорода. Такая процедура, как показывает практика, правомерна в случае относительно малых ( $\leq 2\text{--}3 \text{ at.}\%$ ) концентраций примеси и позволяет учесть вклад многофононного рассеяния на атомах матрицы.

## 3. Спектр колебаний атомов кислорода в тантале

В спектрах частот ТРВ на основе переходных металлов легкие атомы *p*-элементов образуют полосы примесных колебаний выше границы спектра частот атомов матрицы. Граничная энергия колебаний атомов матрицы в исследуемых образцах Ta и  $\text{TaO}_{0.03}$  находится в области  $\varepsilon_b \approx 30 \text{ meV}$ . По аналогии с системой V–O [1] можно ожидать, что структура этих колебаний будет отвечать локальной симметрии междоузельной позиции, занимаемой атомами внедрения. В этом случае колебаниям атомов кислорода в ОМ ОЦК-решетки атомов матрицы должны соответствовать две особенности: невырожденное колебание вдоль короткой оси неидеального октаэдра и дважды вырожденные колебания в перпендикулярной плоскости.

В области  $\varepsilon \geq 30 \text{ meV}$  в  $\text{TaO}_{0.03}$  в спектре НРН (рис. 1) наблюдаются пик  $\varepsilon_1 = 43 \pm 1 \text{ meV}$  и плечо в области передачи энергии  $\varepsilon_2 \approx 53 \text{ meV}$ . Значение  $\varepsilon_1$  удовлетворительно совпадает с ожидаемой величиной энергии низкочастотных колебаний кислорода в Ta  $\varepsilon_1 \approx 48 \text{ meV}$ , полученной из зависимости энергии колебаний кислорода от расстояния  $R_{\text{Me-O}}$  в переходных металлах IVa и Va групп (см. рис. 4 в работе [4]). Для высокочастотной моды в [4] была оценена энергия



**Рис. 1.** Спектр неупругого рассеяния медленных нейтронов в области колебаний атомов кислорода после вычитания спектра рассеяния на чистом тантале. Положения особенностей, указанных стрелками, даны в meV. Горизонтальными отрезками показана полуширина функции разрешения, вертикальными — статистическая погрешность экспериментального спектра.

Частоты колебаний атомов внедрения и атомов матрицы и константы связи металл–металл и металл–примесь

Образец	Атом	Энергия колебаний атома $\hbar\omega$ , meV	Собственная ширина уровня $\Delta E_{\text{loc}}$ , meV	Константа связи с ближайшими соседями $f_i$ , $10^4$ dyn/cm
Ta	Ta	$\sim 16^*$	–	$\sim 6.7^{**}$
$\alpha$ -TaO <sub>0.03</sub>	O	$44 \pm 1$	$3 \pm 1$	$5.4 \pm 0.2$
		$\sim 83$	$\sim 11$	$\sim 19.2$
		$\sim 175$	–	

Примечание. \* Для Ta определена среднеквадратичная частота колебаний.

\*\* Оценка константы межатомного взаимодействия между ближайшими соседями Ta–Ta из  $\langle \omega_{\text{Ta}}^2 \rangle$  в эйнштейновском приближении.

колебаний  $\varepsilon_3 \approx 81$  meV. Однако в спектре НРН сплава TaO<sub>0.03</sub>, полученном в данной работе, высокочастотная особенность  $\varepsilon_3$  практически не проявляется (рис. 1).

При измерениях спектров НРН сплавов с малым содержанием *p*-элементов внедрения в режиме поглощения нейтронами кванта колебательной энергии наблюдение высокочастотных невырожденных ЛМ в ОЦК-структурах затруднено. Во-первых, из-за малой заселенности возбужденных уровней при комнатной температуре и, во-вторых, из-за малого (по сравнению с водородом) сечения рассеяния нейтронов и, как правило, большой ширины уровня. Представление результатов в форме спектра частот позволяет получить энергетические и релаксационные характеристики наблюдаемых пиков и в некоторых случаях „проявить“ плохо определенную моду. Поэтому усредненные по углам рассеяния ДДС преобразовывались в спектры частот.

После вычета фона и учета методических поправок разность спектров ДДС образцов TaO<sub>0.03</sub> и Ta представляет собой в первом приближении спектр нейтронов, рассеянных на атомах кислорода. Он может быть использован для получения в некогерентном приближении так называемого парциального (или локального) спектра колебаний внедренных атомов в сплаве

$$g_j(\varepsilon/\hbar) = g(\varepsilon/\hbar) \langle |\xi_j(\varepsilon/\hbar)|^2 \rangle, \quad (1)$$

$$g(\varepsilon/\hbar) = \sum_j^r p_j g_j(\varepsilon/\hbar). \quad (2)$$

Здесь  $g(\varepsilon/\hbar)$  — спектр частот сплава;  $\langle |\xi_j(\varepsilon/\hbar)|^2 \rangle$  — усредненные по распределению атомов по узлам решетки квадраты модулей векторов поляризации, связанных с колебаниями атомов *j*; *r* — число компонентов разупорядоченного сплава; *p<sub>j</sub>* — концентрация компонентов.

Условия нормировки спектров частот и векторов поляризации запишутся как

$$\int_0^\infty g(\varepsilon) d\varepsilon = 1, \quad (3)$$

$$\int_0^\infty g_j(\varepsilon) d\varepsilon = 1, \quad (4)$$

$$\sum_j^r p_j \langle |\xi_j|^2 \rangle = 1. \quad (5)$$

С учетом этого связь между однофононным сечением некогерентного рассеяния и спектром частот разупорядоченного сплава (см., например, [14]) может быть представлена в виде (для случая поглощения фононов)

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{\text{nc}}^{\text{non-el}} = \frac{k}{2k_0} \frac{\hbar^2 \kappa^2}{\varepsilon} \frac{1}{e^{\varepsilon/kT} - 1} \times \sum_{j=1}^r \frac{b_{\text{nc},j}^2}{M_j} e^{-2W_j} p_j g_j(\varepsilon/\hbar), \quad (6)$$

где  $k_0$  и  $k$  — модули волновых векторов нейтронов до и после рассеяния;  $\kappa = |\mathbf{k}_0 - \mathbf{k}|$  — переданный решетке импульс (в единицах  $\hbar$ );  $b_{\text{nc},j}^2$  — квадрат амплитуды некогерентного рассеяния тепловых нейтронов компоненты *j* сплава.

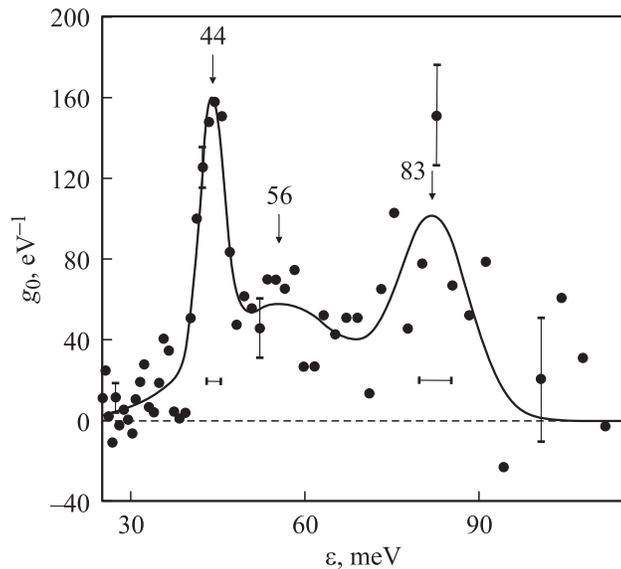
Фактор Дебая–Валлера  $2W = \langle u_j^2 \rangle \kappa^2$  (где  $\langle u_j^2 \rangle$  — среднеквадратичное тепловое смещение атомов сорта *j*) вычисляется непосредственно из парциального спектра частот

$$\langle u_j^2 \rangle = \frac{\hbar^2}{2M_j} \int_0^{\varepsilon_{\text{max}}} \frac{g_j(\varepsilon/\hbar)}{\varepsilon} \text{cth} \frac{\varepsilon}{2kT} d\varepsilon. \quad (7)$$

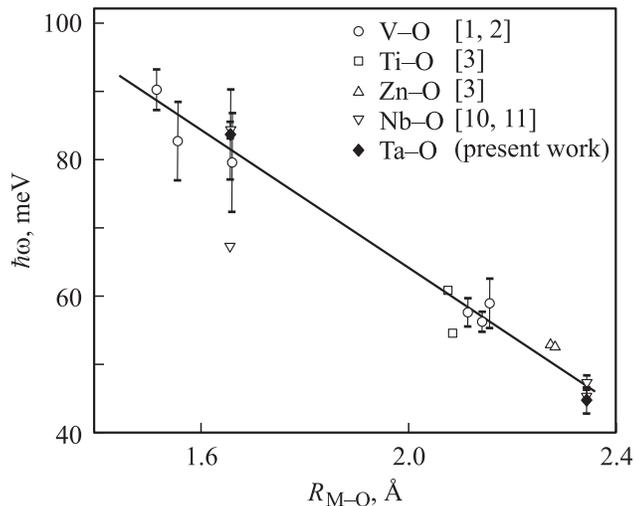
Таким образом, зная спектр колебаний атомов металла  $g_{\text{Ta}}(\varepsilon/\hbar)$  в сплаве TaO<sub>0.03</sub>, можно с помощью итерационной процедуры получить парциальный спектр частот кислорода. При малых концентрациях примеси в качестве  $g_{\text{Ta}}(\varepsilon/\hbar)$  можно использовать спектр частот  $g(\varepsilon/\hbar)$  чистого Ta.

Результат преобразования усредненных ДДС в спектр колебаний атомов O в сплаве TaO<sub>0.03</sub> в области энергий выше граничной частоты спектра колебаний атомов металла  $\varepsilon_b$  представлен на рис. 2.

Полученный парциальный спектр кислорода  $g_O(\varepsilon)$  описывался гауссовыми кривыми методом наименьших квадратов. Для определения собственных ширин  $\Delta E_l$  ЛМ из полученных квадратов ширин  $\Delta E_{\text{tot}}^2$  примесных колебаний на половине высоты (полуширин) вычитался квадрат полуширины функции разрешения  $\Delta E_R^2$ :  $\Delta E_l = (\Delta E_{\text{tot}}^2 - \Delta E_R^2)^{1/2}$ . Найденные значения ширин ЛК кислорода в Ta типичны для ТРВ на основе переходных металлов IV и V групп и определяются главным образом



**Рис. 2.** Спектр колебаний атомов кислорода в сплаве  $\text{TaO}_{0.03}$ . Сплошной линией показан результат описания спектра тремя гауссовыми кривыми. Обозначения те же, что и на рис. 1.



**Рис. 3.** Зависимость энергии колебаний атомов кислорода в фазах внедрения от расстояния металл–примесь без учета локальных искажений. Сплошная линия соответствует линейной аппроксимации экспериментальных точек кислорода.

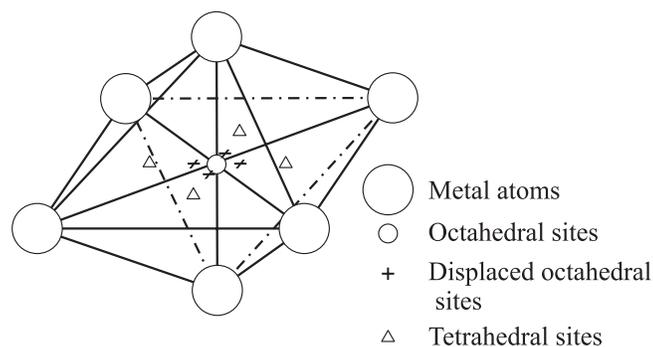
статическими флуктуациями расстояний  $\text{Me}-\text{X}$  [3]. Это означает, что прямое или косвенное (через поля деформаций) взаимодействие атомов примеси между собой мало. Положения максимумов и собственные ширины после учета разрешения установки представлены в таблице.

Как видно из рис. 2, положение максимумов сдвинуто относительно спектров НРН (рис. 1) в область больших частот. Это прежде всего результат учета фактора  $[\varepsilon(e^{\varepsilon/kt} - 1)]^{-1}$  и фактора Дебая–Валлера, а также учета методических поправок. Значение энергии высокочастотной моды ( $\varepsilon_3 = 83 \pm 6$  meV), полученное

как результат наилучшей подгонки гауссовых кривых под экспериментальные точки, почти идеально соответствует общей для систем  $\text{Me}-\text{O}$  зависимости энергии колебаний от расстояния  $R_{\text{Me}-\text{O}}$  (рис. 3). Однако статистическая достоверность полученного значения  $\varepsilon_3$  весьма низкая.

Наблюдаемое в спектре плечо в области  $\varepsilon_2 \approx 56$  meV либо может быть связано с процессами одновременного поглощения решеточных и локальных колебаний атомов кислорода, либо является проявлением более низкой, чем  $D_{4h}$ , симметрии дефекта, образованного атомом кислорода и его ближайшим окружением. Последнее возможно по следующим причинам. Как указывалось выше, в системе  $\text{Y}-\text{O}$ , где занимаемое кислородом междоузлие имеет симметрию почти идеального октаэдра, структура спектра ЛК кислорода не соответствует симметрии  $O_h$  [6]. Особенностью данной системы является то, что расстояние между атомом иттрия и центром ОМ  $R_{\text{Y}-\text{O}} \approx 2.56$  Å заметно превышает сумму радиусов металла и металлоида  $R_{\text{Y}} + R_{\text{O}} = 1.8$  Å +  $0.66$  Å =  $2.44$  Å [15,16]; таким образом, кислород не обязательно занимает центр междоузельной позиции.

В системе  $\text{Ta}-\text{O}$  также возможно смещение междоузельного атома из геометрического центра октаэдрической позиции. Действительно, в  $\text{TaO}_{0.03}$  расстояние между ближайшими атомами тантала и кислорода без учета локальных искажений решетки  $R_{\text{Ta}-\text{O}} = a/2 = 1.657$  Å существенно меньше, чем сумма их радиусов  $R_{\text{Ta}+\text{O}} = R_{\text{Ta}} + R_{\text{O}} = 1.46$  Å +  $0.66$  Å =  $2.12$  Å, что приводит к большим значениям продольных атомных силовых постоянных. Несмотря на сильные локальные искажения вокруг примеси, приводящие к уменьшению продольных связей  $f_l$ , расстояние  $\text{Te}-\text{O}$  остается, по-видимому, существенно меньше равновесного. Следовательно, можно ожидать больших отрицательных значений поперечных связей  $f_t$  ( $f_t = V'(r_1)/r_1$ , где  $r_1$  — расстояние между металлом и примесью с учетом искажений, а  $V'(r_1)$  — производная потенциала взаимодействия  $\text{Ta}-\text{O}$  в точке  $r_1$ ) [17]. Таким образом, имеется тенденция к неустойчивости. В то же время расстояние от центра ОМ до вторых соседей, образующих плоскость, перпендикулярную короткой оси октаэдра,  $R_2 = a/\sqrt{2} = 2.343$  Å заметно больше, чем  $R_{\text{Ta}+\text{O}}$ . Эти факторы могут приводить к заметному (по оценкам до  $0.33$  Å) смещению атомов кислорода из центра октаэдра в сторону любых двух из четырех вторых соседних атомов Ta. При этом симметрия дефекта, состоящего из атома внедрения и шести ближайших атомов тантала, снижается ( $D_{4h} \rightarrow C_{2v}$ ) и в общем случае спектр ЛК должен расщепиться на три синглета. Оценки показывают, что расщепление низкочастотного уровня при смещении на  $\sim 0.3$  Å составляет 3–5%. Следовательно, наблюдаемое плечо  $\varepsilon \approx 56$  meV связано, скорее, с многофонными процессами. Однако, как показывают предварительные расчеты равновесного положения изолированного атома кислорода в решетке тантала с потенциалами взаимодействия  $\text{Ta}-\text{Ta}$  из [18] и  $\text{Ta}-\text{O}$  типа потенциала Джонсона для системы  $\alpha\text{-Fe}-\text{C}$  [19],



**Рис. 4.** Октаэдрическое междуузлие в ОЦК-решетке. Крестиками показана 4C-позиция, определяющая область локализации атома кислорода в решетке тантала.

смещение атома кислорода из центра ОМ решетки тантала, по-видимому, имеет место. При этом потенциальный барьер между смещенными позициями (СП) сравним с энергией первого возбужденного уровня. Кислород таким образом оказывается делокализован по четырем близлежащим СП вокруг геометрического центра октаэдра (4C-позиция на рис. 4). Это, вероятно, приводит к существенному уширению высокочастотной моды, что затрудняет ее экспериментальное наблюдение в спектре НРН.

Для окончательного ответа на вопрос об энергии высокочастотного колебания в данной системе и позиции локализации требуется проведение высокотемпературных исследований ( $T \approx 1500^\circ\text{C}$ ) и, по-видимому, низкотемпературных измерений на монокристаллических образцах, закаленных от этой температуры, с максимальным возможным содержанием кислорода в  $\alpha$ -фазе (5 at.%).

#### 4. Зависимость энергии локальных колебаний от расстояния и константы межатомного взаимодействия металл–примесь

Как указывалось выше, введение кислорода в ОЦК-решетку Ta приводит к сильным локальным смещениям атомов металла, окружающих атом внедрения. Построение зависимости частоты колебаний внедренных атомов от реального расстояния металл–примесь требует учета локальных искажений, величина которых точно не известна. Однако, как было показано в [20], зависимость  $\hbar\omega_{\text{loc}}$  от  $R_{\text{Me-O}}$ , т. е. от расстояния металл–примесь без учета локальных искажений, для фаз внедрения Me–O в первом приближении описывается линейной функцией. Подобная связь была установлена в [4] и для сплавов переходных металлов IV и V групп с азотом. Более того, вся совокупность данных по частотам колебаний атомов кислорода и азота в фазах внедрения (V, Zr, Ti)–O и (Nb, V, Zr, Ti, Ta)–N, приведенная к единичной массе атома внедрения, удовлетворительно описывается общей зависимостью от степени размерного несоответствия  $p$ -

элемента внедрения и междуузельной позиции, в которую он помещается [4,20]. Этот факт свидетельствует об общности природы связи Me–O, N в сплавах переходных металлов IV и V групп с азотом и кислородом.

На рис. 3 приведены зависимости энергии колебаний атомов кислорода в переходных металлах IVa и Va групп от расстояния металл–примесь вместе с экспериментальными точками, полученными в настоящей работе. Как видно, приведенные данные по Ta–O находятся в хорошем согласии с результатами, полученными ранее для энергий колебаний кислорода в ТРВ. При этом данные по системам Nb–O (данные [11]) и Ta–O близки как для высокочастотной, так и для низкочастотной моды ЛК кислорода. В принципе этот факт ожидаем, поскольку параметры решеток NbO<sub>0.03</sub> и TaO<sub>0.03</sub> и радиусы атомов металла практически равны и оба металла имеют изоструктурное строение внешних оболочек, что обеспечивает одинаковое силовое взаимодействие Me–Me и Me–O. Однако выше уже указывалось, что значение энергии высокочастотной моды в NbO<sub>0.03</sub>, как и в TaO<sub>0.03</sub>, не является надежно установленным. Было бы полезно провести высокотемпературные исследования динамики кислорода как в тантале, так и в ниобии.

В таблице приведены результаты расчета константы  $f_l$  продольной связи атомов кислорода с первыми двумя ближайшими атомами металла. Оценка проводилась в улучшенной модели эйнштейновского осциллятора, учитывающей колебания атомов матрицы, аналогично [4]. Для этого использовалось разложение функции Грина матричного кристалла при больших частотах [17]. В пределах экспериментальной точности получаемых результатов можно ограничиться только первым членом разложения функции Грина. Тогда в модели продольной связи атома внедрения с ближайшим окружением связь  $f_l$  с частотой локальных колебаний может быть записана в виде

$$\omega_{\text{loc}}^2 = \frac{k_s f_l}{m} \left( 1 + \frac{m}{k_s M} \right). \quad (8)$$

Здесь  $\omega_{\text{loc}}$  — экспериментальное значение частоты ЛК;  $M$  и  $m$  — массы атомов матрицы и примеси соответственно. Коэффициент  $k_s$  определяется структурой решетки атомов матрицы и типом междуузельной позиции, занимаемой атомом внедрения:  $k_s = 2$  для октаэдрической позиции в ОЦК-, ГЦК- и ГПУ-решетках,  $k_s = 4/3$  для тетраэдрической позиции в ГЦК- и ГПУ-решетках и  $k_s = 4.5$  и  $8/5$  для тетраэдрической позиции в ОЦК-решетке.

В таблице также приведена оценка средней константы связи Ta–Ta, полученная в эйнштейновском приближении из значения  $\langle \omega_{\text{Ta}}^2 \rangle = 16.2 \text{ meV}$ , определенного из парциального спектра частот атомов Ta в TaO<sub>0.03</sub>.

Константа связи между ближайшими атомами Ta и O, рассчитанная из значения энергии высокочастотной моды колебаний кислорода  $\varepsilon_3 = \hbar\omega_3 = 83 \text{ meV}$ , оказывается в 3 раза больше, чем константа связи Ta–Ta. В среднем же силовое взаимодействие кислорода с ближайшими атомами тантала в 1.5 раза больше взаимодействия тантал–тантал.

## 5. Выводы

Сформулируем основные выводы работы.

1) В результате измерений спектров НРН сплава  $\text{TaO}_{0.03}$  определена энергия низкочастотной моды колебаний атомов кислорода в  $\alpha$ -ТРВ  $\text{Ta-O}$   $\varepsilon_1 = 44 \pm 1$  meV. В спектре частот в области примесных колебаний обнаружена особенность  $\varepsilon_3 \approx 83$  meV, отвечающая, по видимому, высокочастотной моде колебаний атомов кислорода в тантале. Однако для надежного установления энергии высокочастотного колебания требуется проведение дополнительных высокотемпературных экспериментов и измерений на монокристаллических образцах.

2) Энергетическое положение особенностей  $\varepsilon_1 \approx 44$  meV и  $\varepsilon_3 \approx 83$  meV соответствует общей для систем  $\text{Me-O}$  зависимости энергии колебаний атомов внедрения от расстояния металл–примесь без учета локальных искажений. Исходя из значений  $\varepsilon_1$  и  $\varepsilon_3$  определены константы  $f_i$  межатомного взаимодействия тантал–кислород в эйнштейновской модели с учетом колебаний атомов матрицы. Среднее значение константы  $f_i$  взаимодействия с первыми двумя ближайшими соседями в 1.5 раза превосходит константу взаимодействия  $\text{Ta-Ta}$ .

3) В отличие от системы  $\text{V-O}$  наблюдение высокочастотной моды в спектре НРН  $\alpha$ -твердого раствора  $\text{Ta-O}$  затруднено. Геометрия междоузлия, занимаемого кислородом в тантале, и размерные соотношения атомов позволяют предположить, что кислород находится в смещенной позиции. При этом четыре близкорасположенные СП образуют специфическую 4С-область локализации кислорода. Отсутствие в спектре НРН хорошо определенной высокочастотной моды может быть связано с делокализацией кислорода в 4С-позиции.

Автор выражает благодарность В.В. Казарникову, Г.П. Никонорову, Н.Г. Примакову и С.В. Терехову за помощь в работе.

## Список литературы

- [1] С.А. Данилкин, В.В. Закуркин, С.И. Морозов, В.В. Сумин. ФТТ **22**, 11, 3327 (1980).
- [2] С.И. Морозов. Письма в ЖЭТФ **67**, 5, 326 (1998).
- [3] С.И. Морозов, В.В. Сумин, А.В. Белушкин, И. Натканец. ФТТ **29**, 6, 1653 (1987).
- [4] С.И. Морозов, В.В. Казарников. ФТТ **35**, 11, 3145 (1993).
- [5] С.И. Морозов, С.А. Данилкин, В.Т. Эм. ЖЭТФ **109**, 6, 2130 (1996).
- [6] С.И. Морозов, В.В. Сумин. ФТТ **33**, 10, 3107 (1991).
- [7] I.S. Anderson, J.J. Rush, T.J. Udovic, J.M. Rome. Phys. Rev. Lett. **57**, 22, 2822 (1986).
- [8] T.J. Udovic, J.J. Rush, I.S. Anderson, J.N. Daou, P. Vajda, O. Blaschko. Phys. Rev. B **50**, 6, 3996 (1994).
- [9] С.И. Морозов, А.И. Бескровный, Н.Г. Примаков, С.И. Терехов. Тр. регионального конкурса научных проектов в области естественных наук. Эйдас, Калуга (2002). В. 3. С. 217.
- [10] С.А. Данилкин, М.Г. Земляков, В.П. Минаев, П.П. Паршин, В.В. Сумин. ФТТ **29**, 7, 2112 (1987).

- [11] S. Danilkin, H. Fuess, E. Ladrovski, T. Wieder, H. Wipf. J. Alloys Comp. **266**, 1–2, 230 (1998).
- [12] Е. Фромм, Е. Гебхард. Газы и углерод в металлах. Пер. с нем. Металлургия, М. (1980). 712 с.
- [13] В.А. Парфенов, П.С. Клемышев, И.Г. Морозов, А.Ф. Павлов. Neutr. Inelast. Scatt. (Vienna, 1977). IAEA, Vienna (1978). Vol. 1. P. 81.
- [14] И.И. Гуревич, Л.В. Тарасов. Физика нейтронов низких энергий. Наука, М. (1965). 607 с.
- [15] Г.В. Самсонов, И.М. Винницкий. Тугоплавкие соединения. Справочник. Металлургия, М. (1976).
- [16] Х.Дж. Гольдшмидт. Сплавы внедрения. Мир, М. (1971). Т. 1. 425 с.
- [17] Г. Лейбфрид, Н. Бройер. Точечные дефекты в металлах. Пер. с англ. Мир, М. (1981). 440 с.
- [18] R.A. Jonson, W.D. Wilson. In: Proc. Int. Conf. Interatomic Potentials and Simulations of Lattice Defects (N.Y.). Plenum Press, London (1972). P. 301.
- [19] R.A. Jonson, G.J. Dienes, A.C. Damask. Acta Met. **12**, 9, 1215 (1964).
- [20] С.И. Морозов. Препринт ФЭИ-1931, Обнинск (1988). 12 с.