

Спектры атомных колебаний в металлическом стекле $\text{Ni}_{64}\text{Zr}_{36}$

© Г.Ф. Сырых, М.Г. Землянов, С.Н. Ишмаев

Российский научный центр "Курчатовский институт",
123182 Москва, Россия

(Поступила в Редакцию 8 мая 1997 г.)

Измерены спектры неупруго рассеянных нейтронов на образцах металлического стекла $\text{Ni}_{64}\text{Zr}_{36}$, различающихся изотопным составом Ni. Восстановлены парциальные плотности колебательных состояний атомов Ni и Zr. Установлено ослабление межатомного взаимодействия Ni с окружающими атомами, но менее существенное, чем предсказано численными расчетами.

Детальное описание атомной структуры и динамики неупорядоченных систем требуется в качестве основы для понимания многих физических свойств, характеризующих аморфное состояние: переход стекло–жидкость (который по своей природе связан с колебаниями атомов) [1], низкотемпературная теплоемкость [2] и теплопроводность [3]; электропроводность [4] и сверхпроводимость [5] металлических стекол и т.д. Важную роль при этом играет экспериментальная верификация имеющихся теоретических подходов.

Металлические стекла являются по крайней мере двухкомпонентными системами. Поэтому наиболее подробная информация о структуре и динамике содержится в парциальных функциях радиального распределения атомов $\rho_{ij}(r)$ и парциальных колебательных спектральных функциях $f_{ij}(k, \omega)$ (i и j принимают значения от единицы до n , n — число элементов в системе). Метод упругого и неупругого рассеяния тепловых нейтронов с применением изотопического контраста [6] позволяет измерять парциальные структурные факторы $S_{ij}(k)$ и парциальные динамические структурные факторы $S_{ij}(k, \omega)$, а также восстанавливать функции $\rho_{ij}(r)$ и $f_{ij}(k, \omega)$. Экспериментальное определение факторов $S_{ij}(k)$ было успешно реализовано для ряда металлических стекол [7,8]. Однако, эксперименты по определению факторов $S_{ij}(k, \omega)$ пока не проводились, поскольку для этого требуется большее количество (30–40 г) дорогостоящих изотопно обогащенных образцов.

Более доступной информацией, с методической точки зрения, является парциальная плотность колебательных состояний $g_i(\omega)$. Эта информация, хотя и менее детальная, но весьма необходимая при описании термодинамических свойств металлических стекол. В данной работе представлены результаты экспериментального определения функций $g_{\text{Ni}}(\omega)$ и $g_{\text{Zr}}(\omega)$ в металлическом стекле $\text{Ni}_{64}\text{Zr}_{36}$.

1. Приготовление образцов и проведение измерений

Были приготовлены два химически идентичных образца $\text{Ni}_{64}\text{Zr}_{36}$ различного изотопного состава: первый образец приготовлен на основе естественной смеси изотопов

Ni, а второй — с использованием изотопа ^{60}Ni . Металлические стекла получены методом быстрой закалки из расплава на вращающемся медном диске в инертной атмосфере (Ar). Линейная скорость на поверхности диска была 40 м/с. Образцы получены в виде лент шириной ~ 2 мм, толщиной ~ 30 μm . Вес "изотопного" образца составил 7.2 г, "естественного" — 30 г. Аморфное состояние образцов подтверждено методами рентгеновской и нейтронной дифракции.

Известно [9], что спектр неупруго некогерентно рассеянных нейтронов ($\sigma(\omega)$) на многокомпонентном образце пропорционален сумме парциальных плотностей колебательных состояний отдельных элементов $g_i(\omega)$

$$\sigma(\omega) \sim \sum_i (c\sigma/m)_i \exp(-2W_i) g_i(\omega),$$

где c , σ и m — концентрация, полное сечение рассеяния нейтронов и масса атома i соответственно, $\exp(-2W_i)$ — фактор Дебая–Валлера.

Зависимость рассеивающей способности нейтронов атомными ядрами от изотопного состава ($\sigma = 18.0$ и 1.08 barn для естественного Ni и изотопа ^{60}Ni соответственно) позволяет из измерений на двух образцах безмодельно восстановить функции $g_{\text{Ni}}(\omega)$ и $g_{\text{Zr}}(\omega)$.

Спектры $\sigma(\omega)$ измерены на спектрометре КДСОГ-М, установленном на реакторе ИБР-2 [10]. Измерения выполнены при комнатной температуре для углов рассеяния θ , равных 80, 100, 120 и 140 градусов. Спектры обрабатывались в некогерентном приближении [11]. Измерение фона проводилось на пустой кассете. На рис. 1 показаны времяпролетные спектры рассеянных нейтронов на системе $\text{Ni}_{64}\text{Zr}_{36}$ с различным изотопным составом (фон и многократное рассеяние учтены). Для образца, приготовленного на основе естественного Ni, преобладает рассеяние на атомах Ni (соотношение весовых факторов $(c\sigma/m)_{\text{Ni}}/(c\sigma/m)_{\text{Zr}} = 0.89/0.11$). А для образца с изотопом ^{60}Ni рассеяние в основном происходит на атомах Zr, так как то же самое соотношение равно 0.32/0.68. Качественное различие в спектрах рассеянных нейтронов отражает разный характер колебательных спектров для атомов Ni и Zr.

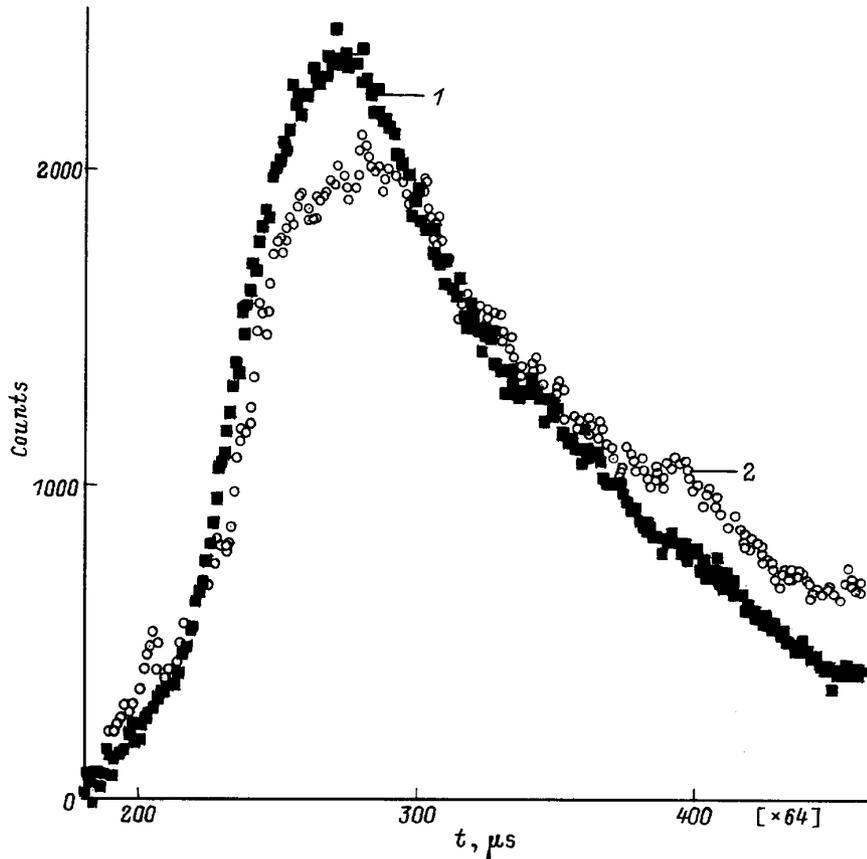


Рис. 1. Времяпролетные спектры рассеянных нейтронов на образцах металлических стекол. 1 — $\text{Ni}_{64}\text{Zr}_{36}$, 2 — $^{60}\text{Ni}_{64}\text{Zr}_{36}$.

2. Результаты и обсуждение

Из полученных спектров рассеянных нейтронов были восстановлены парциальные плотности колебательных состояний (ППКС) для атомов Ni и Zr (рис. 2). Учет факторов Дебая–Валлера и многократного рассеяния в гауссовом приближении выполнялся итерационным методом. Видно, что ППКС для более тяжелого атома Zr (соотношение масс $m_{\text{Zr}}/m_{\text{Ni}} = 1.52$) сконцентрирована, в большей мере, в области низких частот. Однако, в окрестности максимальной частоты спектра вклад атомов Ni и Zr соизмерим. Были рассчитаны вторые частотные моменты по парциальным спектрам: $\langle \omega^2 \rangle_i = \int_0^\infty \omega^2 g_i(\omega) d\omega / \int_0^\infty g_i(\omega) d\omega$. Из-за конечного разрешения спектрометра, спектры ниже 3 meV аппроксимировались зависимостью Дебая (на величину $\langle \omega^2 \rangle$ эта часть спектра заметного влияния не оказывает). Вторые частотные моменты связаны со средней силовой константой взаимодействия (B) данного атома со всеми окружающими атомами: $\langle \omega^2 \rangle_i = B_i/m_i$. Оказалось, что обратное соотношение вторых частотных моментов по спектрам атомов Zr и Ni равно 1.12, т.е. меньше, чем соотношение масс, равное 1.52, что свидетельствует о более слабом межатомном взаимодействии для атомов Ni по сравнению с атомами Zr.

В [12] методом компьютерного моделирования вычислены парциальные динамические структурные факторы и спектры ППКС в металлической системе $\text{Ni}_{1-x}\text{Zr}_x$. Использовались парные потенциалы межатомного взаимодействия, полученные из квантовомеханических расчетов [13]. Из них следовало, что взаимодействие Ni–Ni значительно ослаблено по сравнению с взаимодействиями Ni–Zr и Zr–Zr. На рис. 3 показаны расчетные спектры ППКС атомов Ni и Zr для металлического стекла $\text{Ni}_{65}\text{Zr}_{35}$, взятые из [12]. Отметим, что экспериментальный и расчетный энергетический интервалы колебательных спектров (различием химического состава можно пренебречь) практически совпадают. Однако, расчетные спектральные распределения колебаний атомов Ni и Zr отличаются от экспериментально полученных данных. Расчетные спектры в низкочастотной области и вблизи максимальной частоты практически совпадают. При этом максимум колебательной плотности для атомов Ni находится при более низких частотах, чем для атомов Zr. Это приводит к тому, что соотношение вторых частотных моментов $\langle \omega^2 \rangle_{\text{Ni}}/\langle \omega^2 \rangle_{\text{Zr}}$ оказывается равным 0.97, т.е. меньше экспериментального значения — 1.12.

Таким образом, методом неупругого рассеяния нейтронов с применением изотопического контраста измерены парциальные плотности колебательных состояний

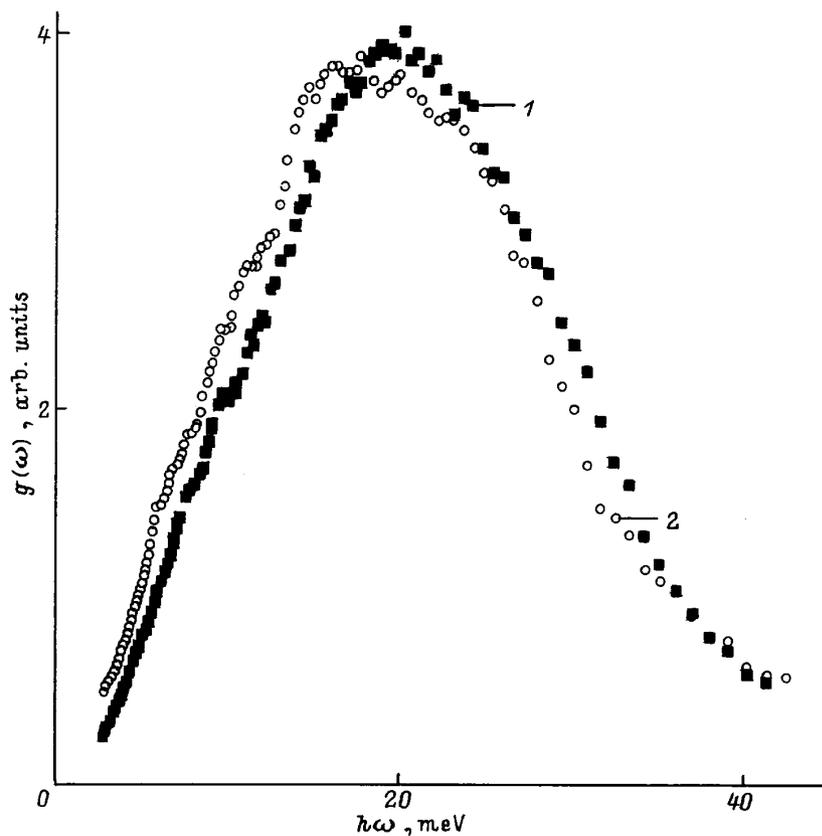


Рис. 2. Парциальные плотности колебательных состояний атомов Ni и Zr в металлическом стекле $Ni_{64}Zr_{36}$. 1 — $g_{Ni}(\omega)$, 2 — $g_{Zr}(\omega)$.

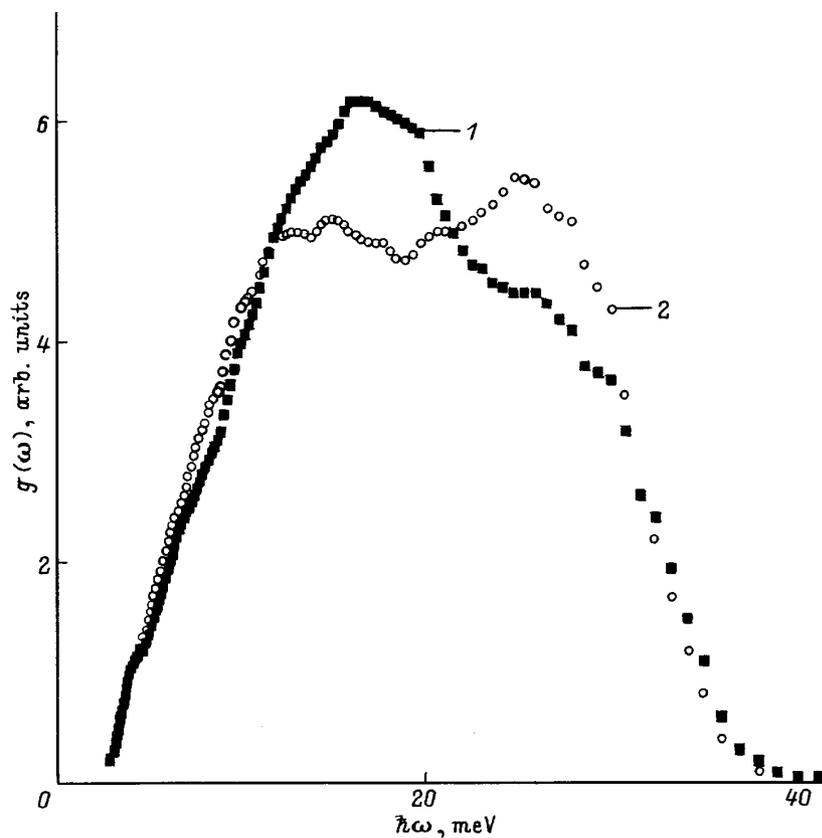


Рис. 3. Расчетные парциальные плотности колебательных состояний атомов Ni и Zr в металлическом стекле $Ni_{65}Zr_{35}$. 1 — $g_{Ni}(\omega)$, 2 — $g_{Zr}(\omega)$ (из работы [12]).

в металлическом стекле $Ni_{64}Zr_{36}$. Колебательный спектр тяжелых атомов Zr смещен в область более низких значений частот по сравнению со спектром атомов Ni . Тем не менее, соотношение средних квадратов частот гораздо меньше обратного соотношения масс, что свидетельствует о более слабой связи атомов Ni со всеми окружающими атомами. Компьютерное моделирование атомной динамики в металлическом стекле $Ni_{65}Zr_{35}$ дает хорошее совпадение частотного интервала с экспериментально измеренным, но предсказывает более радикальное ослабление константы взаимодействия для атомов Ni .

Работа выполнена в рамках программы Российского фонда фундаментальных исследований (проект 95-02-04690).

Список литературы

- [1] U. Bengtzelius, W. Gotze, A. Sjolander. *J. Phys. C: Sol. Stat. Phys.* **17**, 5915 (1984).
- [2] U. Mizutani, T. Mizoguchi. *J. Phys. F: Met. Phys.* **11**, 7, 1385 (1981).
- [3] I.R. Matey, A.C. Anderson. *Phys. Rev.* **B16**, 8, 3406 (1978).
- [4] J. Hafner. *J. Non-Cryst. Sol.* **69**, 3253 (1985).
- [5] J. Jackle, K. Frobese. *J. Phys. F: Met. Phys.* **10**, 1471 (1980).
- [6] S. Lovesey, T. Springer. *Dynamics of Solids and Liquids by Neutron Scattering*. Springer, Berlin, (1977). 812 p.
- [7] S. Lefebvre, A. Quiry, J. Bigot, Y. Calvayrac, R. Bellissent. *J. Phys. F: Met. Phys.* **15**, L99 (1985).
- [8] E. Svab, S.N. Ishmaev. *Exp. Tech. Phys.* **36**, 89 (1988).
- [9] Н.А. Черноплеков, М.Г. Землянов, Е.Г. Бровман, А.Г. Черчин. *ФТТ* **5**, 1, 112 (1963).
- [10] Г. Балука, А.В. Белушкин, С.И. Брагин, Т. Залески, М.З. Ишмухаметов, И. Натканец, В. Олеярчик, Я. Павелчик. Препринт ОИЯИ № P13-84-242. Дубна (1984). 15 с.
- [11] В.С. Оскотский. *ФТТ* **9**, 1, 240 (1967).
- [12] J. Hafner, M. Krajci. *J. Phys.: Condens. Matter* **6**, 4631 (1994).
- [13] Ch. Hausleitner, J. Hafner. *Phys. Rev.* **B45**, 1, 115 (1992).