

30/11-70

A-465

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

P14 - 5358



ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

Ю.А. Александров, А.М. Балагуров, Г.С. Самосват,  
Л.Е. Фыкин

ФАКТОР ДЕБАЯ-ВАЛЛЕРА ДЛЯ ВОЛЬФРАМА

1970

P14 - 5358

Ю.А. Александров, А.М. Балагуров, Г.С. Самосват,  
Л.Е. Фыкин

ФАКТОР ДЕБАЯ-ВАЛЛЕРА ДЛЯ ВОЛЬФРАМА

Направлено в журнал  
"Физика твердого тела"



8578/2 40

Для количественного анализа дифракции нейтронов или рентгеновских лучей на кристаллической решетке необходимо знать фактор Дебая-Валлера

$$f = \exp \left[ - 2M(T) \left( \frac{\sin \theta}{\lambda} \right)^2 \right], \quad (1)$$

где  $\theta$  - брэгговский угол,  $\lambda$  - длина волны излучения,  $M(T)$  - величина, зависящая от температуры и внутренних свойств кристалла. Для анализа некоторых экспериментальных результатов ошибка в  $M(T)$  не должна превышать 2-3%<sup>/1/</sup>. Экспериментальные методы определения фактора Дебая-Валлера не дают такой точности. Методом, удовлетворяющим поставленному условию, является расчёт  $M(T)$  по данным о теплоемкости элемента. В работе Баррона и др.<sup>/2/</sup> получены формулы для  $M(T)$  при низких и высоких температурах. Для расчёта требуются некоторые моменты частотного распределения

$$\overline{\omega^n} = \frac{1}{I} \int_0^{\infty} g(\omega) \omega^n d\omega \quad (2)$$

(  $g(\omega)$  - фононный спектр кристалла,  $I = \int_0^{\infty} g(\omega) d\omega$  ), которые могут быть получены из данных о теплоемкости. Более универсальным и надежным является метод Казарновского<sup>/3/</sup>, позволяющий рассчитать  $M(T)$  для любой температуры, если теплоемкость решетки известна в достаточно широком интервале температур.

1. В гармоническом приближении теории колебаний

$$M(T) \approx \bar{M}(T) = 8\pi^2 \bar{u}^2, \quad (3)$$

где  $u$  - отклонение атома от положения равновесия. Для одноатомных кубических решеток Браве  $\bar{u}^2$  можно записать в виде интеграла по спектру частот кристалла. Тогда

$$\bar{M}(T) = \frac{4\pi^2 \hbar^2}{mI} \left[ \int_0^{\infty} \frac{g(\omega)}{\hbar\omega} d\omega + 2 \int_0^{\infty} \frac{g(\omega)}{\hbar\omega} \alpha\left(\frac{\hbar\omega}{kT}\right) d\omega \right], \quad (4)$$

где  $\alpha(x) = (e^x - 1)^{-1}$ ,  $m$  - масса атома кристалла.

Теплоемкость решетки при постоянном объеме также связана с тепловыми колебаниями:

$$\bar{C}_V(T) = \frac{3}{I} \frac{d}{dT} \int_0^{\infty} g(\omega) \hbar\omega \alpha\left(\frac{\hbar\omega}{kT}\right) d\omega. \quad (5)$$

Как показал Казарновский<sup>/3/</sup>, между  $M(T)$  и  $C_V(T)$  существует однозначная связь. Действительно, если первое и второе слагаемые в (4) обозначить через  $G_0$  и  $G_1(T)$  соответственно, то легко проверить, что

$$G_0 = \frac{I}{\pi^2 k^2} \int_0^{\infty} \bar{C}_V(t) \frac{dt}{t^2}, \quad (6)$$

$$G_1(T) = \frac{2I}{3k^2} \sum_{n=1}^{\infty} \int_0^{T/n} \frac{dt}{t^2} \left( \frac{1}{t} - \frac{n}{T} \right) \sum_{m=1}^{\infty} \mu_m \int_0^{t/m} \bar{C}_V(t') dt',$$

где  $\mu_m$  - известные коэффициенты разложения в ряд Дирихле функции, обратной дзета-функции Римана.  $\mu_1 = 1$ ,  $\mu_{m \neq 1} = (-1)^l$ , если  $m$  - произведение  $l$  различных простых чисел,  $\mu_m = 0$  во всех остальных случаях.

Таким образом, располагая данными о  $C_V(T)$  в достаточно широком интервале температур, можно рассчитать  $M(T)$ .

Мы использовали формулы Казарновского для определения фактора Дебая-Валлера для вольфрама в связи с необходимостью оценки величины амплитуды нейтрон-электронного взаимодействия<sup>/1/</sup>.

Теплоемкость вольфрама при постоянном давлении в интервале температур от  $10^0$  до  $273^0$  К измерена Клузиусом и Францезини<sup>/4/</sup>. Авторами вводится поправка на  $C_p - C_v$  и учитывается вклад электронной теплоемкости. Ниже  $10^0$  К и выше  $273^0$  К мы экстраполировали  $C_v$  по формулам:

$$\begin{aligned} \tilde{C}_v &= a T^3, & T < 10^0 \text{ К}, \\ \tilde{C}_v &= \text{const} - b/T^2, & T > 273^0 \text{ К}. \end{aligned} \quad (7)$$

Величина  $\tilde{M}(T)$ , рассчитанная по формулам (4) и (6) на ЭВМ СДС-1604А, оказалась равной

$$\tilde{M} = 0,1620 \text{ \AA}^2 \text{ при } T = 293^0 \text{ К}. \quad (8)$$

Это соответствует значению дифракционной дебаевской температуры  $\theta_M = 343^0$  К.

2. Кроме расчёта по формулам Казарновского,  $\tilde{M}(T)$  было определено из фоновнного спектра вольфрама, а также измерено экспериментально.

Используя результаты работы <sup>/5/</sup>, в которой теоретически рассчитан фононный спектр вольфрама, мы получили для  $T = 293^{\circ}\text{K}$

$$M = 0,167 \text{ \AA}^2 \quad (\theta_M = 337^{\circ}\text{K}). \quad (9)$$

Величина (9) является гораздо менее точной, чем (8). Так, только лишь из-за неопределенности в низкочастотной части спектра поправка может составлять  $\approx 4\%$ .

Эксперимент по определению  $M(T)$  был проведен на реакторе филиала Физико-химического института им. Карпова на монокристаллическом спектрометре нейтронов ( $\lambda = 1,27 \text{ \AA}$ ). Методика эксперимента заключалась в анализе угловой зависимости интегральной интенсивности дифракционных пиков, возникающих при рассеянии нейтронов на спрессованном порошке естественного вольфрама (вес  $\approx 5 \text{ г}$ ). Измерялись пять отражений от (110) до (411). Обработка результатов велась по обычной методике (см., например, <sup>/6/</sup>). Результаты двух независимых измерений ( $T = 293^{\circ}\text{K}$ ) есть:

$$M = (0,20 \pm 0,04) \text{ \AA}^2, \quad (10)$$

$$M = (0,13 \pm 0,03) \text{ \AA}^2.$$

Экспериментальные точки и прямые, проведенные по методу наименьших квадратов, представлены на рисунке.

Приведенные величины (8), (9) и (10) хорошо согласуются друг с другом. Большие ошибки экспериментальных результатов, к сожалению, не дают возможности проверить расчёты. Более точные результаты можно получить, исследуя температурную зависимость интегральных интенсивностей. Однако и в этом методе точность лучше  $8\text{-}10\%$  недостижима, т.к. неизвестна истинная температурная зависимость  $M(T)$  <sup>/7/</sup>.

3. Как отмечалось выше, формулы (3), (4), (5), а следовательно, и полученный результат (8) справедливы, если можно пренебречь ангармонизмом колебаний атомов решетки. Не зная потенциала взаимодействия атомов, учесть ангармонизм невозможно. Поэтому мы сделаем лишь некоторые оценки. На результате (8) ангармонизм сказывается двояко, во-первых, потому, что при определении  $C_V(T)$  из экспериментальных значений  $C_P(T)$  ангармонизм учитывался неполностью; во-вторых, потому что  $M(T)$  в (1) содержит дополнительные слагаемые, помимо  $\tilde{M}(T)$ .

Рассмотрим этот вопрос подробнее.

а)  $C_V(T)$  содержит ангармоническую добавку

$$C_V(T) = \overset{\approx}{C}_V(T) + C_{\text{анг.}}(T).$$

Согласно /8/  $C_{\text{анг.}}(T) \approx T^3$  при  $T \rightarrow 0$  и

$$C_{\text{анг.}}(T) \approx T \quad \text{при} \quad T \geq \theta,$$

причём  $C_{\text{анг.}} < C_P - C_V$ .

Изменение  $a$  в (7) на 10% и вклада  $C_P - C_V$  на 100% (что заведомо перекрывает возможный вклад ангармонизма) меняет  $\tilde{M}$  в (8) на 0,2% и 0,7% соответственно. Следовательно, значение  $\tilde{M}$  могло быть завышено (т.к.  $C_{\text{анг.}} > 0$ ) на величину  $\approx 1\%$ :

$$\frac{M_{\text{анг.}}}{M} \approx 0,01. \quad (10)$$

б) Как показано в /8/, при  $T < 2\theta$

$$\frac{M_{\text{анг.}}}{M} \approx 2 \frac{C_P - C_V}{C_V} + q \frac{C_{\text{анг.}}}{C_V}, \quad (12)$$

где  $q$  - множитель порядка единицы. Эта оценка хорошо согласуется с экспериментальными данными /7,10/.

Для вольфрама (12) дает

$$\frac{M_{\text{анг.}}}{M} \approx 0,015. \quad (13)$$

Так как  $C_{\text{анг}} > 0$  и, следовательно,  $M_{\text{анг}} > 0$ , то ошибки (11) и (13) могут лишь компенсировать друг друга. Итак, ошибка величины (8) складывается в основном из ошибок: 1) в измерении  $C_p$  ( $\approx 0,5\%$ ), 2) в значениях констант экстраполяции в (7) ( $< 0,2\%$ ); 3) в величине вклада электронной теплоемкости ( $< 0,7\%$ ), а также из неучтенного ангармонизма ( $< 1,5\%$ ). Таким образом, верхнюю оценку ошибки величины (8) можно считать равной  $2,3\%$ .

Авторы выражают благодарность Ф.Л. Шапиро и М.В. Казарновскому за полезные обсуждения.

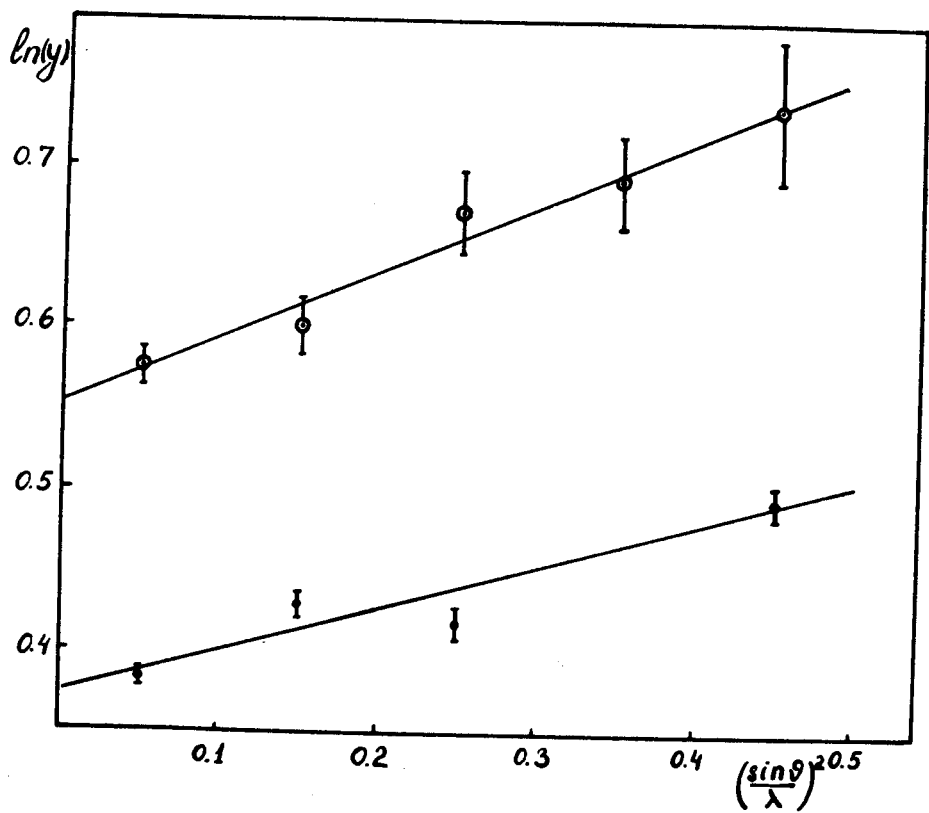
#### Литература

1. Ю.А. Александров. Препринт ОИЯИ, РЗ-4783, Дубна, 1969.
2. T.H.K. Barron, A.J. Leadbetter, J.A. Morrison, L.S. Salter. ISNSL, vol. 1, 49, 1963.
3. М.В. Казарновский. ЖЭТФ, 38, 1652 (1960).
4. K. Clusius, P. Franzosini, Z. Naturforschung, 14a, 99 (1959).
5. P.S. Mahesh, B. Dayal. Phys.Rev., 143, 443 (1966).
6. О. Джеймс. Оптические принципы дифракции рентгеновских лучей, ИЛ, 1950.
7. R.D. Chipman, J.Appl.Phys., 31, 2012 (1960).
8. Г. Лейбфрид, В. Людвиг. Теория ангармонических эффектов в кристаллах, ИЛ, 1963.
9. М.А. Кривоглаз, Е.А. Тихонова. Кристаллография, 6, 496 (1961).
10. C.R. Brooks, R.E. Bingham. J.Phys.Chem.Solids., 29, 1553 (1968).

Рукопись поступила в издательский отдел

10 сентября 1970 года.





К определению  $M(T)$  из эксперимента по дифракции нейтронов.  
 $y = \exp[-2M(T)(\frac{\sin \theta}{\lambda})^2]$ , а  $M(T)$  определяется наклоном прямой. Под-  
 робнее см. /6/.