

СООБЩЕНИЯ  
ОБЪЕДИНЕННОГО  
ИНСТИТУТА  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА



С 343Г

К-30

6/IX-76

P14 - 9790

3475/2-76

Л.Каун, Б.Липпольд, В.Матц, К.Хенниг

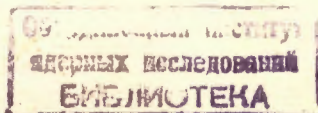
О НЕКОТОРЫХ ИССЛЕДОВАНИЯХ  
С ПОМОЩЬЮ НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ  
НА ИМПУЛЬСНОМ РЕАКТОРЕ ИБР-30

**1976**

P14 - 9790

Л.Каун, Б.Липпольд, В.Матц, К.Хенниг

О НЕКОТОРЫХ ИССЛЕДОВАНИЯХ  
С ПОМОЩЬЮ НЕУПРУГОГО РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ  
НА ИМПУЛЬСНОМ РЕАКТОРЕ ИБР-30



Каун Л. и др.

P14 - 9790

О некоторых исследованиях с помощью неупругого рассеяния нейтронов на импульсном реакторе ИБР-30

Наблюдалось расщепление кристаллическим полем основного уровня иона Pr в поликристаллах  $\text{PrFeO}_3$ ,  $\text{PrGaO}_3$ ,  $\text{PrAl}_2$  и  $\text{Pr}_3\text{Al}$  с помощью метода неупругого рассеяния тепловых нейтронов. При разных температурах переходы между кристаллическими уровнями измерялись методом времени пролета при использовании бериллиевого фильтра перед нейтронным детектором. Дана схема энергетических уровней этих веществ, которая была получена в экспериментах. Та же установка использована для измерения неупругого рассеяния на водороде, растворенном в  $\text{Pr}_3\text{Al}$  и La. В этом случае в области передачи высоких энергий ( $\sim 100$  мэВ) водороду наблюдался спектр типа спектра гармонического осциллятора.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований  
Дубна 1976

Kaun L. et al.

P14 - 9790

Some Experiments on Neutron Inelastic Scattering at the Pulsed Reactor IBR-30

The crystal field splitting of the  $^3H_4$  ground state of the Pr ion in polycrystalline  $\text{PrFeO}_3$ ,  $\text{PrGaO}_3$ ,  $\text{PrAl}_2$ , and  $\text{Pr}_3\text{Al}$  has been investigated by inelastic scattering of thermal neutrons. At several temperatures the transitions between the crystalline field levels have been measured by using the time-of-flight technique with a beryllium-filter in front of the detector. From the experiments the energy level scheme for each compound has been deduced. By the same method the inelastic scattering on hydrogen solved in  $\text{Pr}_3\text{Al}$  and La has been studied. For high energy transfer ( $\sim 100$  meV) a harmonic oscillator type behaviour of the spectra has been obtained.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research  
Dubna 1976

Для проведения экспериментов по рассеянию тепловых нейтронов существуют в принципе два вида мощных источников нейтронов: стационарный и импульсный. Как известно, импульсный реактор ИБР-30 в Дубне уже много лет используется для исследований в области ядерной физики и физики твердого тела. Подробности об этом реакторе можно найти в <sup>1/</sup>. Средняя тепловая мощность ИБР-30 составляет 30 кВт. Из-за периодичной генерации импульсов нейтронов он особенно подходит для экспериментов, выполняемых с помощью техники по времени пролета /сокр. ТВП/.

В наших исследованиях по рассеянию тепловых нейтронов на поликристаллических образцах используется так называемый метод обратной геометрии <sup>2/</sup>. В этом случае на образец падает белый пучок, поэтому метод обладает большой светосилой и применяется на реакторах со сравнительно малой средней мощностью.

На рис. 1 дано схематическое изображение нашего довольно простого спектрометра обратной геометрии.



Рис. 1. Схематическое представление экспериментальной установки:  
1 - замедлитель, 2 - образец, 3 - бериллиевый фильтр, 4 - защита, 5 - детектор.

Передача энергии  $\Delta E$  при однократном рассеянии может быть рассчитана с хорошей точностью из соотношения для суммарного времени пролета:

$$N \cdot \tau = a \left\{ \frac{L_1}{(E_c + \Delta E)^{1/2}} + \frac{L_2}{E_c^{1/2}} \right\},$$

где  $N$  - номер канала,  $\tau$  - ширина канала,  $a$  - коэффициент  $(m_n/2)^{1/2}$  с  $m_n$  - массой нейтрона,  $L_1$  и  $L_2$  - I и II пролетные базы и  $E_c$  - граничная энергия материала фильтра.

Мы использовали этот метод для определения величины и типа расщепления основного состояния  $^3H_4$  парамагнитного иона  $Pr^{3+}$  кристаллическим полем в некоторых соединениях. В случае кубической точечной симметрии основное состояние свободного иона  $Pr^{3+}$  в данной решетке расщепляется на четыре подуровня. При более низкой симметрии число подуровней может достигнуть  $9/3/$ .

Двойное дифференциальное сечение для парамагнитного рассеяния на одном ионе в дипольном приближении записывается в виде  $^{4/}$

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = G \frac{k_f}{k_i} f^2(\kappa) \sum_{n,m} \rho_m |\langle n | J_{\perp} | m \rangle|^2 \delta\left(\frac{E_n - E_m}{h} - \omega\right),$$

где  $G = (1,91 e^2 g_J / 2m_n c^2)^2$ ,  $g_J$  - фактор Ланде;  $k_f$  и  $k_i$  - волновые вектора рассеянного и падающего пучка нейтронов;  $f(\kappa)$  - магнитный формфактор;  $\vec{\kappa} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$  - вектор рассеяния;  $\rho_m$  - заселенность энергетических уровней  $E_m$ ;  $|n\rangle$  и  $|m\rangle$  - собственные функции, описывающие кристаллические уровни  $E_n$  и  $E_m$ ;  $J_{\perp}$  - компонента оператора полного количества движения, перпендикулярного  $\vec{\kappa}$ .

Первые эксперименты были проведены нами на изоляторах. На рис. 2 и 3 показаны ТВП - спектры для  $PrFeO_3$  и  $PrGaO_3$ . В табл. 1 дана энергетическая схема кристаллических уровней для обоих веществ. Точечная симметрия иона  $Pr^{3+}$  в этом случае -  $C_s$ , что должно приводить к расщеплению основного состояния на 9 подуровней. Тот факт, что мы наблюдали только 6 уровней, можно объяснить или малым различием по энергии для некоторых уровней /разрешающая способность по

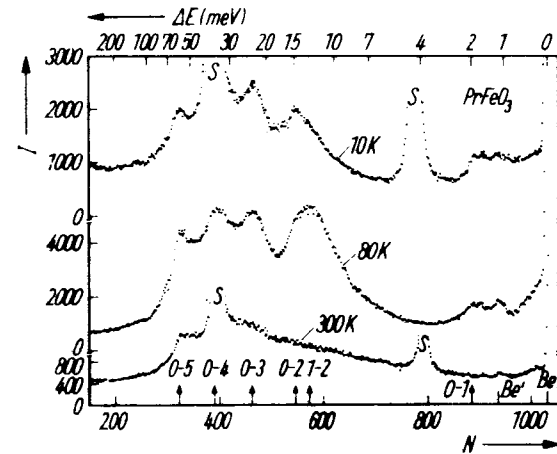


Рис. 2. Спектры, измеренные по времени пролета для  $PrFeO_3$  при 10, 80, 300К. Стрелки указывают положения максимумов, обусловленных переходами между кристаллическими уровнями, S обозначают положения так называемых сателлитов, типичных для реакторов типа ИБР. Спектр при 80К был получен в результате двух измерений при различных положениях сателлитов. I - число отсчетов на канал за 35 часов измерения,  $\Delta E$  - передача энергии в мэВ, N - номер канала при ширине канала 32 мкс, Be - бериллиевая граница и Be' - бериллиевая предграница.

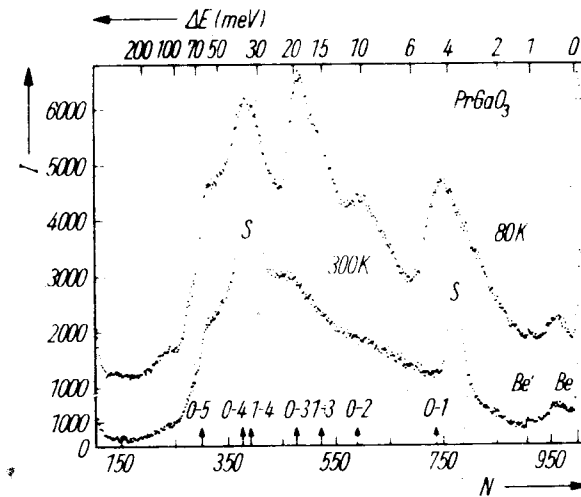


Рис. 3. Спектры, измеренные по времени пролета для  $PrGaO_3$  при 80 и 300 К. Время измерения - 35 ч. Остальные символы - как на рис. 2.

Таблица 1

Схема энергетических уровней для  $\text{PrFeO}_3$  и  $\text{PrGaO}_3$ , полученная с помощью рассеяния нейтронов. Энергии даны в мэВ

Обозначения уровней	0	1	2	3	4	5
$\text{PrFeO}_3$	0	$2,0 \pm 0,1$	$14,7 \pm 0,4$	$23,2 \pm 0,5$	$36 \pm 1$	$58 \pm 2$
$\text{PrGaO}_3$	0	$4,7 \pm 0,1$	$10,7 \pm 0,3$	$20,0 \pm 0,4$	$37 \pm 1$	$65 \pm 2$

энергии данного спектрометра составляла  $\sim 14\%$  в области  $\Delta E$ , равной  $10 \div 100$  мэВ/ или малой вероятностью переходов между ними.

Главное преимущество метода неупругого рассеяния нейтронов по сравнению с другими методами проявляется в исследованиях металлов и металлических соединений. На рис. 4 и 5 показаны ТВП - спектры  $\text{PrAl}_2$  и  $\text{Pr}_3\text{Al}$ , полученные вышеописанным методом.  $\text{PrAl}_2$  имеет кубическую структуру фазы Лавеса. Это вещество упорядочивается ферромагнитно при  $T_c \sim 34\text{K}^{/6/}$ . Направление оси упорядочения -  $\langle 100 \rangle$ . Таким образом, можно наблюдать максимально четыре перехода между кристаллическими уровнями внутри расщепленного основного состояния  $\text{H}_4$  в парамагнитной области ( $T > 34\text{K}$ ).

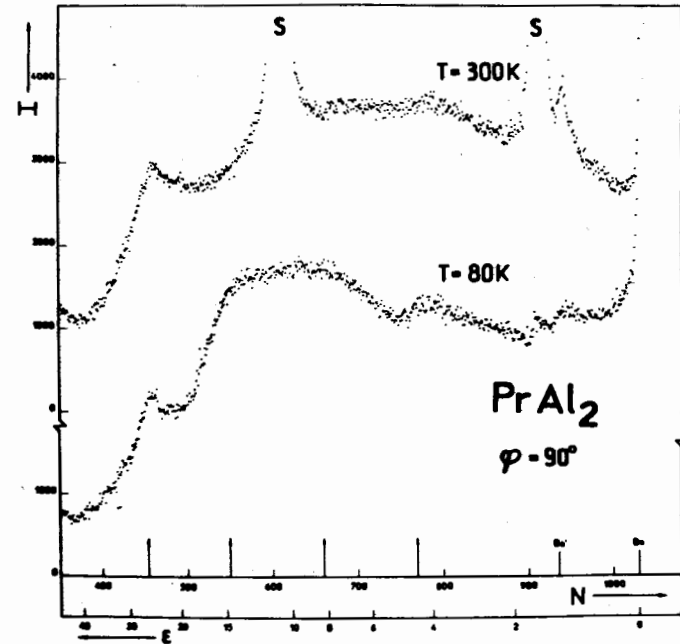


Рис. 4. ТВП-спектры для  $\text{PrAl}_2$ . Угол рассеяния  $\phi$  составлял  $90^\circ$ . Время измерений - 80 ч.  $\epsilon$  - передача энергии в мэВ. Остальные символы - как на рис. 2.

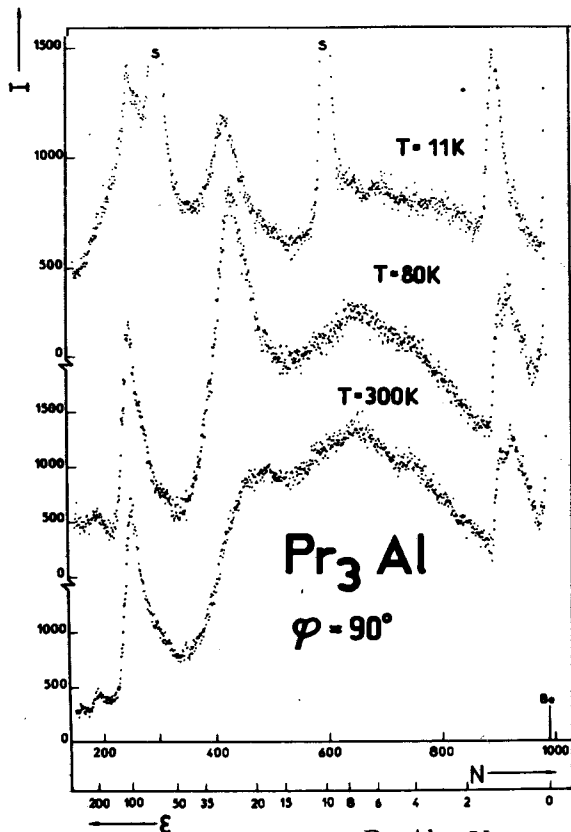


Рис. 5. ТВП-спектры для  $\alpha$ - $\text{Pr}_3\text{Al}$ . Угол рассеяния  $\phi = 90^\circ$ . Время измерения - 80 ч при  $T = 300\text{ K}$ , 70 ч при  $T = 80\text{ K}$  и 13 ч при  $T = 11\text{ K}$ .  $\epsilon$  - передача энергии в мэВ. Остальные символы - как на рис. 2.

Таблица 2

Энергетические уровни и набор параметров кристаллического поля для  $\text{PrAl}_2$  (из нейтронных измерений)

Значения энергетических уровней в парамагнитной области:  $\Gamma_3(0)$ ,  $\Gamma_5(8,2\text{ мэВ})$ ,  $\Gamma_4(15\text{ мэВ})$ ,  $\Gamma_1(36\text{ мэВ})$ . ЛЛВ - параметры <sup>3/</sup>:  $x = -0,58 \pm 0,02$ ;  $W = -(0,48 \pm 0,02)\text{ мэВ}$ . Значение молекулярного поля:  $H_M = (480 \pm 50)\text{ кЭ}$ . Параметры кристаллического поля:  $B_4 = (47 \pm 4) \cdot 10^{-4}\text{ мэВ}$ ,  $B_6 = -(156 \pm 12) \cdot 10^{-6}\text{ мэВ}$ .

С другой стороны, при  $T < T_c$  вырождение  $^3H_4$ -состояния  $\text{Pr}^{3+}$  полностью снимается. В работе <sup>7/</sup> в рамках приближения молекулярного поля для оси упорядочения в направлении  $\langle 100 \rangle$  было рассчитано расщепление как функция внутреннего магнитного поля в точке расположения иона  $\text{Pr}^{3+}$ . В табл. 2 дан набор параметров для  $\text{PrAl}_2$ , полученный нами путем измерений на импульсном реакторе в Дубне и на стационарном высокопоточном реакторе в Гренобле.

$\text{Pr}_3\text{Al}$  обладает более сложной кристаллической структурой, чем  $\text{PrAl}_2$ . При  $T$  меньше чем  $600\text{ K}$  существует так называемая  $\alpha$ -фаза гексагональной структуры. Эта фаза упорядочивается ферромагнитно при  $T_c \sim 16\text{ K}^{8/}$ . В табл. 3 даны пять найденных в нашем эксперименте переходов. Так как в данном случае точечная структура иона  $\text{Pr}^{3+}$  является  $C_{2v}$ , т.е. вырождение основного состояния снимается полностью, поэтому видно, что наблюдаемое количество переходов меньше ожидаемого. Это опять можно объяснить указанными выше причинами. Можно дать еще и другое объяснение. Если предположить, что  $\text{Pr}$  и  $\text{Al}$  обладают одинаковыми точечными зарядами /в случае кубической структуры такое предположение, по-видимому, было сделано в <sup>9/</sup> /, то ион  $\text{Pr}^{3+}$  теперь будет находиться в гексагональном окружении и, следовательно, возможное число переходов уменьшится.  $^3H_4$  в этом случае расщепляется на 6 уровней с девятью разрешенными переходами между ними <sup>10/</sup>. При учете влияния внутреннего магнитного поля на расщепление этих шести уровней <sup>10/</sup> наши результаты можно описать величиной параметра  $x \sim 0,6$ . Вытекающая из этого схема уровней дана в табл. 4.

На рис. 5 можно видеть переходы с относительно высокой энергией  $\Delta E$ . Интересно, что эти переходы следуют правилу  $\Delta E$ ,  $2\Delta E$ ,  $3\Delta E$  и особенно хорошо видны при  $T = 300\text{ K}$ . Измерение с помощью ЯМР показало присутствие водорода в образце  $\text{Pr}_3\text{Al}$ . Эти высокоэнергетические переходы можно связать с состояниями водорода, растворенного в этом образце.

Подобная ситуация наблюдалась и для других редкоземельных металлов. На рис. 6 показан, например,

Таблица 3

Энергии переходов для  $\alpha$ -Pr<sub>3</sub>Al (из нейтронных измерений)

Температура (К)	Энергии $\Delta E$ (мэВ)		
300	4,2±0,2	7,6±0,2	11,1±0,4
80	4,3±0,2	8,1±0,2	11,1±0,2
11	3,2±0,2	6,1±0,2	9,2±0,2
			17,3±0,3
			21,2±0,5
			100±5
			202±6
			309±10
			197±6
			100±5
			102±5

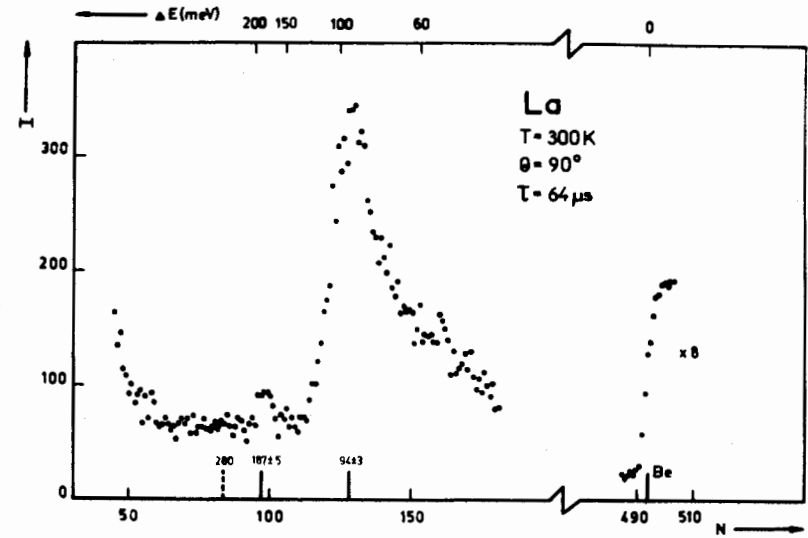


Рис. 6. ТВП-спектры для La. Угол рассеяния  $\theta = 90^\circ$ . Время измерения - 2 ч. Остальные символы - как на рис. 2.

результат для La, который содержал 3-5 ат. % водорода. Из этих экспериментов можно заключить, что водород "чувствует" гармонический потенциал, и с точки зрения фононного представления это значит, что в этом случае действует модель Эйнштейна /11/.

Последние результаты показывают, что сравнительно простой спектрометр обратной геометрии в сочетании с импульсным источником типа ИБР-30 дает хорошие возможности для исследования процессов в области передачи высоких энергий  $\langle 300 \rangle \Delta E \langle 20 \text{ мэВ} \rangle$ . Поэтому мы думаем, что этот метод является подходящим

Таблица 4

Значения энергетических уровней для  $\alpha$ -Pr<sub>3</sub>Al:

$\Gamma_{52}$  (0),  $\Gamma_6$  (4,2 мэВ),  $\Gamma_1$  (6,3 мэВ),  $\Gamma_{51}$  (3,0 мэВ),  $\Gamma_3$  (17,3 мэВ),  $\Gamma_4$  (27 мэВ).

для изучения расщепления кристаллических уровней в металлических соединениях актинидов, где оно должно быть больше, чем в редкоземельных соединениях, и для исследований металлов с растворенным в них водородом.

Нам хочется выразить благодарность докторам Ю.М.Останевичу и Л.Черу за полезные дискуссии.

### Литература

1. И.М.Франк. Проблемы физики элементарных частиц и атомного ядра. ЭЧАЯ, 2, вып. 4, 807 /1972/.
2. А.Байорек, Т.А.Мачехина, К.Парлински, Ф.Л.Шапиро. Препринт ОИЯИ, Р-1899, Дубна, 1964;  
K. Parlinski, M. Sudnik-Hryniewicz, A. Bajorek, T. A. Janik, W. Olejarczyk. Research Applications of Nuclear Pulsed Systems, IAEA, Vienna, 1967, p. 179.
3. E. Fick, G. Joos. Handbuch der Physik, Band XXVIII Springer-Verlag, 1957, p. 205;  
K. R. Lea, M. J. M. Leask, W. P. Wolf. J. Phys. Chem. Solids, 23, 1381 /1962/.
4. P. G. DeGennes. Magnetism, vol. 3, p. 115, Academic Press, New York and London /1963/.
5. K. Feldmann, K. Hennig, L. Kaun, B. Lippold, M. M. Lukina, S. Matthies, W. Matz, E. Warming. phys. stat. sol. (b), 72, 817 /1975/.
6. N. Nereson, C. Olsen, C. Arnold. J. Appl. Phys., 39, 4605 /1968/.
7. K. Hennig, S. Matthies. Preprint JINR, E17-9535, Dubna, 1975.
8. K. H. Mader, W. E. Wallace. J. Less-Common Metals, 16, 85 /1968/.
9. R. J. Birgeneau, J. Als-Nielsen, E. Bucher. Inelastic Scattering of Neutrons (Proc. Symp. Grenoble, 1972) IAEA, Vienna, 1972.
10. E. Segal, W. E. Wallace. J. Solid State Chem., 2, 347 /1970/; J. Solid State Chem., 6, 99 /1973/.
11. И.И.Гуревич, Л.В.Тарасов. Физика нейтронов низких энергий, Москва, Наука, 1965, стр. 107.

Рукопись поступила в издательский отдел  
17 мая 1976 года.