

Courbe de fusion du tantale: la fin d'une controverse

La courbe de fusion est la ligne de transition, $T(P)$, entre le solide et le liquide dans le plan température[T]/pression[P]. C'est une donnée essentielle pour décrire les lois de comportement d'un matériau. C'est en particulier une ligne de rupture dans sa réponse mécanique. Mais les résultats de mesure ou de calcul de la fusion sous pression sont encore très discutés dans la littérature. En particulier, les points de fusion du tantale mesurés par compression statique et dynamique étaient en net désaccord. Nous avons revisité la courbe de fusion de ce métal en compression statique, en utilisant la cellule à enclumes de diamants chauffée par laser et un nouveau diagnostic de la fusion basé sur la diffraction de rayons X synchrotron. Des difficultés expérimentales ont été identifiées, qui avaient pu biaiser les résultats publiés. Nos points de fusion sont en accord avec les mesures dynamiques, ce qui met fin à la controverse concernant la fusion de cet élément sous pression.

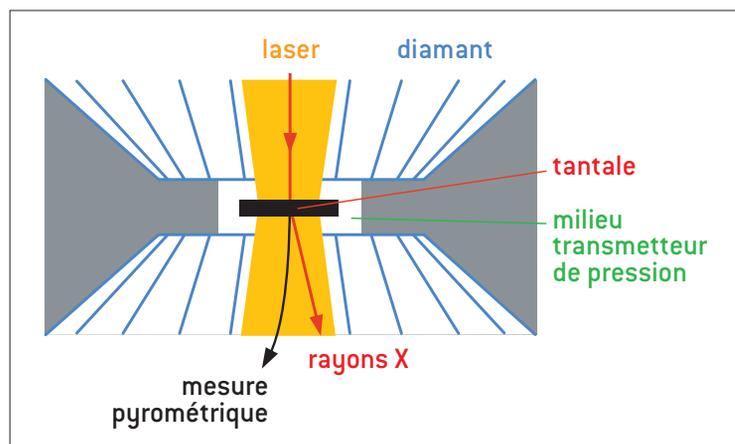
A. Dewaele • P. Loubeyre CEA - DAM Île-de-France
 M. Mezouar European Synchrotron Radiation Facility (ESRF), Grenoble
 N. Guignot Synchrotron Soleil, Saint Aubin

Ces dernières années, de nombreux travaux théoriques et expérimentaux ont été consacrés à la courbe de fusion des éléments sous haute pression. Cependant, la fusion reste une transition de phase difficile à prédire et modéliser, car elle a lieu à haute température, quand le système est éloigné de son état fondamental (à $T = 0$ K) qui est celui qui est prédit exactement par les calculs *ab initio*. Sa caractérisation expérimentale est également difficile car il s'agit de créer et de mesurer des conditions extrêmes de pression (plusieurs millions d'atmosphères) et de température (plusieurs milliers de K) et dans le même temps d'atteindre et de caractériser l'état d'équilibre du système.

Le cas du tantale est exemplaire des efforts, des problèmes et des controverses dans la détermination de la courbe de fusion des éléments [1]. Encore récemment, les températures de fusion mesurées pour le tantale différaient de plusieurs milliers de degrés dans le domaine 100-300 GPa (1-3 millions d'atmosphères). En utilisant la compression par un choc créé par l'impact d'un projectile sur l'échantillon, un point de fusion à environ 9700 K à 300 GPa [1] avait été obtenu. Mais en utilisant des Cellules à enclumes de diamants chauffées par laser (CEDL), où l'échantillon est comprimé entre deux diamants et chauffé par un laser infrarouge focalisé, une équipe

allemande a mesuré visuellement des points de fusion atteignant seulement 3730 K à 100 GPa [2]. Cette courbe de fusion était en désaccord avec les prédictions théoriques annonçant une pente dT/dP environ quatre fois plus importante; extrapolée à plus haute pression, elle était également incompatible avec les points de fusion mesurés par choc. Il a été proposé que le changement observé

Figure 1. Schéma de la chambre de pression dans la cellule à enclumes de diamants chauffée par laser. Différents milieux transmetteurs de pression (sels, gaz rares, oxydes) ont été utilisés.



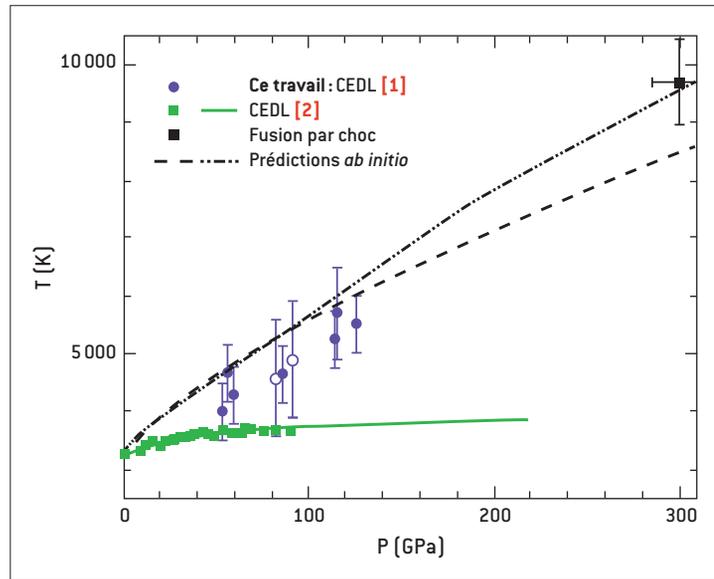


Figure 2.
Points de fusion
du tantale.

en CEDL ne correspondait pas à la fusion mais au polymorphisme [3] ou à un changement des propriétés mécaniques [4].

Nous avons utilisé un nouveau diagnostic de fusion, basé sur la diffraction de rayons X en CEDL, pour étudier la fusion du tantale. Ce diagnostic avait été validé pour le plomb [5]. Le faisceau de rayons X synchrotron et les lasers sont focalisés sur un même point de l'échantillon ; sa température est mesurée par pyrométrie (figure 1). La diffraction de rayons X permet de détecter la fusion, le polymorphisme, ainsi que des réactions chimiques de l'échantillon avec son environnement au cours du chauffage. La mesure de la dilatation thermique de l'échantillon par diffraction de rayons X permet de confirmer la mesure pyrométrique de sa température.

Nos expériences ont montré que le tantale réagit avec l'enclume en diamant de la CEDL pour former un carbure. Cette réaction chimique perturbe fortement l'observation de changements structuraux dans l'échantillon lors du chauffage. Nous avons aussi observé que la fusion du matériau entourant le tantale, appelé milieu transmetteur de pression (comme l'argon ou le NaCl) peut changer ses propriétés optiques et donc affecter les mesures pyrométriques. Ceci est un réel problème pour le tantale qui est très réfractaire, et pour qui il est impossible de trouver un milieu transmetteur de pression qui ne fonde pas avant lui. Ces difficultés peuvent expliquer les points de fusion anormalement bas mesurés en CEDL [2].

Les mesures pyrométriques validées par la dilatation thermique de l'échantillon montrent que la température de fusion du tantale est bien plus élevée que ce qui avait été mesuré précédemment en CEDL : $5\,500 \pm 500$ K à 125 GPa. Jusqu'à ce point, le tantale ne subit aucune transformation polymorphique.

La figure 2 montre que dorénavant, les points de fusion en CEDL sont en accord avec les points par choc et les prédictions théoriques [1]. Nous pensons que cette étude établit de nouveaux standards pour les études de physiques en CEDL, qui doivent être appliquées en particulier pour étudier le diagramme de phase du fer sous très haute pression.

RÉFÉRENCES

- [1] A. DEWAELE, M. MEZOUAR, N. GUIGNOT, P. LOUBEYRE, "High Melting Points of Tantalum in a Laser-Heated Diamond Anvil Cell", *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 255701 (2010).
- [2] D. ERRANDONEA, B. SCHWAGER, R. DITZ, C. GESSMANN, R. BOEHLER, M. ROSS, "Systematics of transition-metal melting", *Phys. Rev. B*, **63**, 132104 (2001).
- [3] L. BURAKOVSKY *et al.*, "High-Pressure - High-Temperature Polymorphism in Ta: Resolving an Ongoing Experimental Controversy", *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 255702 (2010).
- [4] C. J. WU, P. SÖDERLIND, J. N. GLOSLI, J. E. KLEPEIS, "Shear-induced anisotropic plastic flow from body-centred-cubic tantalum before melting", *Nature Mater.*, **8**, p. 223-228 (2009).
- [5] A. DEWAELE, M. MEZOUAR, N. GUIGNOT, P. LOUBEYRE, "Melting of lead under high pressure studied using second-scale time-resolved x-ray diffraction", *Phys. Rev. B*, **76**, 144106 (2007).