

钯氢的热中子非弹性散射*

陈桂英 成之绪 吴享南¹⁾ 阮景辉

(中国科学院原子能研究所)

提 要

在铍过滤探测器谱仪上,对含氢量为 $x = 0.17$ 和 0.67 的两种钯氢 (PdH_x) 样品分别测定了定域模(或光学支),观察到 $x = 0.67$ 的定域模峰位置相对于 $x = 0.17$ 的峰位置向低能移动约 5 毫电子伏,定性地讨论了定域模软化与超导性的关系。

一、引 言

1972 年 Skoskiewicz^[1] 发现钯氢具有超导性之后,引起了实验工作者和理论工作者的极大兴趣,相继发表了一些有价值的研究报告。仅仅在几年的时间内,将转变温度 T_c 从最初的 1 K 左右提升到 17 K,对比于其它超导材料来说, T_c 增加的速度是相当快的。

在观察钯氢的超导性中出现一些特别引人注目的现象,例如反同位素效应和氢阈等。所谓氢阈,是指钯氢中氢含量 x 大于一定值后才具有超导性 ($x \geq 0.75$)^[1,2],这个事实反映出钯氢中氢含量直接与它的超导性紧密相关。另外, Eichler 等人的隧道实验证实^[3],钯氢中氢所形成的定域模参与了电-声子相互作用,这个事实又表明定域模与其超导性有关。基于以上两个现象,促使我们利用中子非弹性散射方法测定不同含氢量的钯氢样品的定域模特征,研究它们之间的特殊关联。

二、实验结果和讨论

测量工作是在原子能研究所重水堆旁的铍过滤探测器谱仪上完成的。测量方法和装置详见文献[4]。与前不同的是铍过滤器是由七块铍片(每块大小为 $1 \times 10 \times 15$ 厘米³)中间夹铜片所组成,并用液氮冷却。

钯氢样品是由通常的充氢方法制得。将八片纯钯(每片大小为 $0.02 \times 5 \times 5$ 厘米³)置于充氢容器内,先加热至 800°C 一小时排气,然后将温度降到 460°C ,充进大约两个大气压的纯化氢气,两小时逐渐降温。

从容器中取出来的鲜样品的含氢量,由称重法确定为 $x = 0.67$,经半年(置于空气中)存放后,样品中的大部分氢通过扩散缓慢放出,余留的氢含量为 $x = 0.17$ 。因此测量工作分两阶段进行,中间间隔半年。测量时所用样品厚度为 1.6 毫米。

* 1979 年 2 月 1 日收到。

1) 北京有色金属研究院。

图 1 中标出 $x = 0.17$ 和 0.67 两种氢含量样品的测量结果. 横坐标为中子能量转移 $\hbar\omega$, 或为声子能量, 纵坐标为相对中子计数, 即钡氢样品的中子计数与相同厚度的纯钡的中子计数之差. 图内所有的实验点都为原始的测量数据, 曲线是由实验点直接绘出.

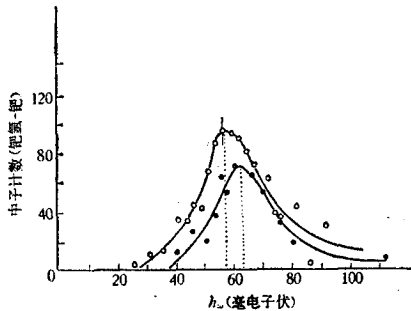


图 1 (钡氢-钡)的中子散射谱

—○— $x = 0.67$; —●— $x = 0.17$

从图 1 中 $x = 0.17$ 和 $x = 0.67$ 的两条曲线得出, 定域模位置分别在 (62 ± 1) 和 (57 ± 1) 毫电子伏, 半宽度分别为 24 和 25 毫电子伏. 可见, 含氢量从 0.17 增加到 0.67, 定域模向低能方向移动约 5 毫电子伏, 而半宽度变化不大. Rahman 等人^[5]在散裂中子源上对 $x = 0.63$ 的钡氢进行了测量, 其结果与我们 $x = 0.67$ 的样品的结果一致, 这不仅说明测量结果的可靠性, 也表明定域模的位置是与一定氢含量相对应的.

按照 Mcmillan 理论公式, 表征电-声子相互作用的“ λ ”值是反比于声子频率 ω 平方的平均, 即 $\lambda \sim 1/\langle \omega^2 \rangle$. 因此声子能量的软化, 加强了电-声子的相互作用, 从而促进了向超导态的转变, 同时有助于获得较高的转变温度 T_c . 对钡氢来说, 随着氢含量的增高, 参加电-声子相互作用的定域模的软化, 有助于向超导态的转变. 当其钡氢中的含氢量在氢阈以下时, 定域模声子软化的程度可能还不够获得强的电-声子相互作用, 以致不能呈现超导的特性. 含氢量增高以致达到或超过氢阈后, 定域模声子进一步软化, 导致较强的电-声子相互作用, 从而引起了质的变化——过渡到超导态. 如此设想是建立在钡氢处在超导态时 ($x \geq 0.75$) 定域模声子持续软化之上的.

为了确证持续软化的事实, 我们寻找了有关的实验数据, 并列于表 1. 表 1 中数据有力地支持了我们以上的看法. Drexel 等人^[6]的结果是在极低的含氢量 ($x = 0.002$ 到 0.02) 研究钡中氢杂质的运动规律时得到的, 虽然该文不涉及钡氢的超导性问题, 我们把它引入表内是为了说明定域模软化从十分低的含氢量就已经开始了. 表 1 中三个隧道实验得到的定域模位置分别在 ~ 49 和 ~ 48 毫电子伏处, 它们的含氢量都在氢阈以上而处于超导态, 可见在超导态时定域模是进一步软化了.

表 1 钡氢定域模软化的证据

作 者	实验方法	含氢量 x	定域模位置 (meV)	参考文献
Drexel <i>et al.</i>	中子非弹性散射	0.002→0.02	66→63	[6]
本文结果	同 上	0.17	62	
		0.67	57	
Rahman <i>et al.</i>	同 上	0.63	56	[5]
Eichler <i>et al.</i>	隧道实验	~ 0.9	$\sim 49^*$	[3]
Silverman <i>et al.</i>	同 上	~ 1	~ 48	[7]
Dynes <i>et al.</i>	同 上	~ 1	~ 48	[8]

* 我们从文献 [3] 测定的钡氢定域位置 ~ 35 毫电子伏, 乘 $\sqrt{2}$ 后得到钡氢相应位置

这里要特别提到的是,我们从三篇隧道实验的文章觉察到,可能因为他们专注于论述钯氢定域模参与电-声子相互作用这一新的现象,而不得不去迎合中子非弹性散射的结果,因此他们没有从软化的角度去分析结果,而勉强地认为近似于中子实验的结果. 尽管钯氢的隧道实验目前还不够准确,然而三个独立的测量结果都表示出超导态钯氢的定域模是处在 ~ 48 毫电子伏左右,这不会是偶然的了. 我们认为处于超导态的隧道实验结果 (~ 48 毫电子伏)不能借助于处于非超导态的已有的中子实验数据 (~ 56 毫电子伏)相比较,从而判定结果的正确性,这是因为处于超导态时定域模已经进一步软化了.

从上面所述,可以得出以下结论:

1. 我们的实验结果对定域模软化提供了一个有力的证据.
2. 本文综合和重新分析了已有的测量结果表明,钯氢的定域模随着含氢量的增多而不断软化.
3. 钯氢超导性能够通过定域模软化加以解释.

以上讨论中未涉及软化的微观结构,这还有待于进一步探索. 从实验的角度看,对不同含氢量的钯氢样品(特别是处于超导态的样品, $x \sim 0.8$),用中子非弹性散射方法测定色散曲线是很有价值的.

对于文中结果的分析,中国科学院物理研究所的赵忠贤、高国儒和郭树泉等同志提供了有益的意见,特此致谢.

参 考 文 献

- [1] T. Skoskiewicz, *Phys. Stat. Sol. (a)*, **11**(1972), K122.
- [2] W. Buckel and B. Stritzker, *Z. Phys.*, **257**, 1(1972).
- [3] A. Eichler *et al.*, *Solid State Commun.*, **17**((1975), 213.
- [4] 阮景辉等,高能物理与核物理,**2**(1978)441.
- [5] A. Rahman *et al.*, *Phys. Rev. B*, **14**(1976), 3630.
- [6] W. Drexel *et al.*, *J. Phys. Chem. Solids*, **37**(1976), 1135.
- [7] P. J. Silverman and E. V. Briceo, *Phys. Letters*, **53A**(1975), 221.
- [8] R. C. Dynes and J. P. Garno, *Bull. Am. Phys. Soc.*, **20**(1975), 422.

THERMAL NEUTRON INELASTIC SCATTERING OF PALLADIUM HYDRIDES (PdH_x)

CHEN GUI-YING CHENG ZHI-SHIUH WU SHIAN-NAN RUAN JING-HUI

(Institute of Atomic Energy, Academia Sinica)

ABSTRACT

The local modes (or optical branches) of the PdH_x samples for $x = 0.17$ and 0.67 have been measured respectively with the Beryllium Filter Detector Spectrometer. It was observed that the position of the peak for the $\text{PdH}_{0.67}$ is about 5 meV lower than that of the $\text{PdH}_{0.17}$. The relation between the softening of local modes and the superconductivity has been discussed qualitatively.