

氢化锆 ($\text{ZrH}_{1.7}$) 和钯氢 ($\text{PdH}_{0.7}$) 光学声子的温度效应

阮景辉 陈桂英 张南宁

(中国原子能科学研究院)

1985 年 1 月 21 日收到

提 要

在本院重水堆旁的铍过滤探测器中子非弹性散射谱仪上,对氢化锆($\text{ZrH}_{1.7}$)(含碳 0.2%)和钯氢($\text{PdH}_{0.7}$)两种金属氢化物在室温和低温(97K)两种温度下,分别测定了光学声子能谱.结果表明:氢化锆的光学声子能级是等间距的,能级宽度基本上不随温度变化,即光学声子的非谐性是微弱的,较好地遵从爱因斯坦的谐振模型;而钯氢的第二个光学声子能级间距大于第一个能级间距约 8meV,并且光学声子能级的宽度从室温下的 38meV 变化到低温(97K)下的 20meV,这表明对钯氢的超导性起决定作用的光学声子,存在较明显的非谐性.

一、引 言

金属氢化物分布于十分广阔的领域,它正在不断地引起人们的注意.金属中氢的动力学特性与金属氢所具有的许多典型的宏观物理性质有关.氢化锆是一个良好的反应堆慢化材料.它的独特声子谱谱形,使它具有较大的负温度效应,从而提高了堆的安全性能.尽管氢化锆的光学声子特性,已有较多的报道^[1],然而它的动力学特性仍然是感兴趣的,特别是它的光学声子能级和间距随温度的变化规律,以便于研究它的非谐性.另外,为了防止氢脆效应,在氢化锆中加入少量($\sim 0.2\%$)的碳原子,加碳后的氢化锆的声子特性,迄今还未见报道.本文研究的另一种氢化物钯氢,是一个具有反同位素效应和氢域的超导体,已经引起了实验和理论工作者的极大兴趣.迄今它的超导机理和反常特性还没有得到肯定的解释.作者的早期文章^[2]报道了它的光学声子(或称定域模)随氢含量增加而软化的特性,分析了钯氢的超导性-氢含量-光学声子软化之间的特殊关系. Skold^[3]的实验表明 $\text{PdH}_{0.65}$ 的光学模超过 $\text{PdD}_{0.65}$ 的光学模的 $\sqrt{2}$ 倍,并归结为钯氢光学声子的非谐性效应,进而 Ganguly^[4]用非谐性的概念来解释反同位素效应.在这些研究工作的基础上,我们预想通过测定钯氢光学模的能级间距和能级宽度的温度效应,使之进一步澄清钯氢的光学声子的非谐性特性.

二、实验结果和讨论

热中子非弹性散射测量是在本院重水堆旁的铍过滤探测器谱仪上进行的.测量装置

和方法详见文献[1],与前不同的是铍过滤器是由七块铍片(每块大小为 $1 \times 10 \times 15\text{cm}^2$)中间夹镉片所组成,并在液氮冷冻之下。

氢化锆($\text{ZrH}_{1.7}$)样品,厚为 1mm ,面积为 $6 \times 6\text{cm}^2$,样品中含 0.2% 的碳;钯氢($\text{PdH}_{0.7}$)样品厚约 1.6mm ,面积为 $4 \times 5.7\text{cm}^2$ 。测量时样品放在一个可控温的液氮冷冻装置的样品架上,贮存液氮的容器未加液氮时,样品处于室温状态,当其加入液氮后,样品温度为 97K 。

氢化锆和钯氢两种样品在室温和低温 97K 下分别测定了光学声子谱,其结果示于图1和图2中。图中横坐标为声子能量 $\hbar\omega$,纵坐标为铍过滤探测器的相对中子计数。曲线下标出的三角形为能量分辨能力。

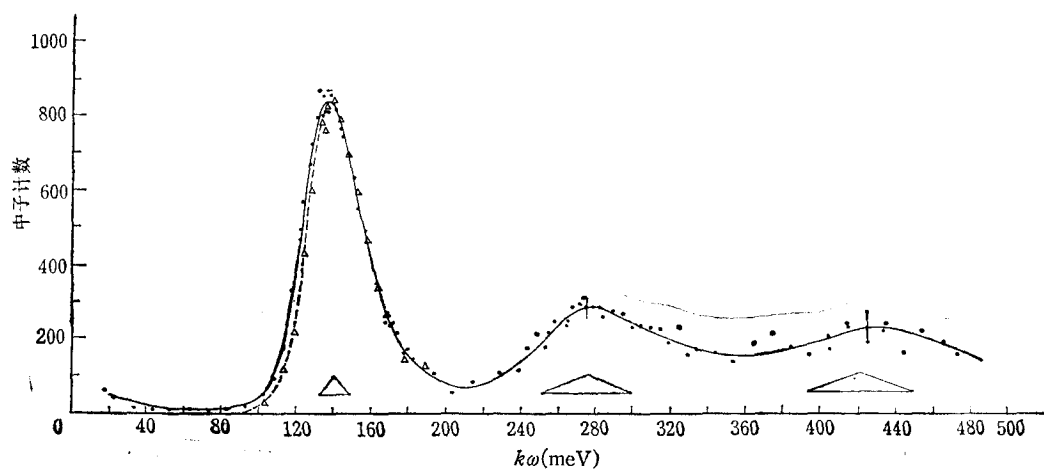


图1 氢化锆($\text{ZrH}_{1.7} + 0.2\%\text{C}$)的光学声子谱

●为室温; Δ 为 $\sim 97\text{K}$

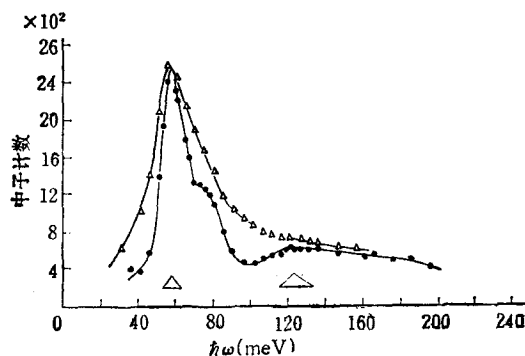


图2 钯氢($\text{PdH}_{0.7}$)的光学声子谱

Δ为室温; ●为 97K

1. 氢化锆($\text{ZrH}_{1.7}$) (含碳 0.2%)

为了与文献[1]的结果比较,扩大测量能区直至 16meV 。高能也扩展到 480meV 。图

1 中显示出三个结构峰,第三个峰的计数统计性和能量分辨较差,但结构仍然是明显的.直接从图 1 中曲线定出三个光学能级的位置分别为 $138 \pm 2 \text{ meV}$, $275 \pm 4 \text{ meV}$ 和 $418 \pm 5 \text{ meV}$, 这表明能级间距在实验误差范围内是相等的. 第一光学能级的位置与我们早期的结果^[1]符合,而能级宽度 ($\sim 3.5 \text{ meV}$) 宽于早期的值 ($\sim 24 \text{ meV}$), 这可能是碳原子的影响.

从图 1 的结果表明,两种温度下所测得的第一光学声子峰没有明显的变化,仅仅宽度从室温下的 39 meV 下降到 97 K 时的 38 meV , 即减小约 1 meV . 这个差别是在测量的误差范围之内. 以上结果说明氢化锆的光学声子对温度是不敏感的,温度效应是微弱的.

由于氢化锆的光学声子能级间距在误差范围内没有变化 (保持常数间距 138 meV), 并且第一光学能级(基频)的宽度几乎没有温度效应,这两个实验事实较充分地说明氢化锆是较好地符合爱因斯坦的谐振模型,它的非谐性是很微弱的.

本结果与作者早期的结果^[1]比较表明,除了光学声子峰位置是相符合以外,而且光学声子峰与声学声子峰的比值也是一致的,这说明氢化锆中加入少量的碳原子后,较大地抑制了氢脆,而氢化锆所具有的独特声子谱特性没有变化. 这里要加以说明的是早期的结果在约 40 至 80 meV 区域内有一些微弱的结构峰,而本结果在此能区内几乎没有声子存在. 我们认为可能是早期的实验条件不良,未能充分地避免铍块本身产生的散射中子的贡献.

2. 钯氢 ($\text{PdH}_{0.7}$)

如图 2 所示,钯氢在室温下,除了峰在 $57 \pm 2 \text{ meV}$ 的第一光学模的结构被分辨出来外,第一光学模的高能尾巴与第二光学模重叠在一起而难于分辨,约在 122 meV 处似乎有一拐点,另外在第一光学模的高能尾巴约 78 meV 处还有另一拐点. 对比之下,在 97 K 的光学模结构显示得更为清楚. 第一光学模的峰位仍在 57 meV 处,与室温的结果一致. 第二光学模的峰位大约在 122 meV . 由于第二光学模的高能段与第三光学模相连,它们之间的峰谷未能分辨出来,而在约 78 meV 处的结构峰则显露出来了. 此结构峰可能与钯氢的超导性有着密切的关系,有待进一步探讨.

钯氢的光学声子随温度的变化,除了以上表明的峰结构的明显程度有较大区别外,最为明显的差别是第一光学模(基频)的半宽度从室温下的 38 meV 改变到 97 K 时的 20 meV , 这揭示出钯氢的光学声子存在着较强的非谐效应. 另外,这种非谐效应还表现在第二光学模的峰位 (122 meV) 不为第一光学模的峰位 (57 meV) 的两倍,超过大约 8 meV . 以上两个反映非谐效应的实验事实,再结合 Skold 的实验结果 ($\text{PdH}_{0.63}$ 的光学模峰位超过 $\text{PdD}_{0.63}$ 的光学模峰位的 $\sqrt{2}$ 倍)^[3], 充分说明了对钯氢超导性起决定性作用的光学声子模具有强的非谐性. 因此有理由认为钯氢超导体的反同位素效应主要是光学声子的非谐性所产生的.

参 考 文 献

- [1] 阮景辉等,高能物理与核物理, 2(1978), 441.

- [2] 陈桂英等, 物理学报, **29**(1980), 257.
[3] B. N. Ganguly, *Phys. Rev.*, **B14** (1976), 3848.

TEMPERATURE EFFECTS OF OPTICAL PHONON FOR $\text{ZrH}_{1.7}$ AND $\text{PdH}_{0.7}$

RUAN JING-HUI CHEN GUI-YING ZHANG NAN-NING

(*Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275, Beijing*)

ABSTRACT

The optical phonon spectra for $\text{ZrH}_{1.7}$ (containing 0.2% C) and $\text{PdH}_{0.7}$ are measured at room temperature and low temperature (97 K) with beryllium filter detector spectrometer adjacent to the heavy water pile in the Institute of Atomic Energy. The results show that:

(1) Optical phonon Energy Level for $\text{ZrH}_{1.7}$ is equal essentially spacing, the width of energy level essentially does not change with T i.e. the anharmonicity of optical phonon is weak and it obeys Einstein harmonic model.

(2) The second optical phonon energy level spacing for $\text{PdH}_{0.7}$ is about 8 meV larger than that of the first level spacing, and the width of its optical phonon energy level changes from 38 meV at room temperature to 20 meV at 97 K. This means that the optical phonons which play important role in superconductivity of PdH_x exhibit significant anharmonicity.