

氧化钪 ( $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ) 的热漫散射强度解析\*

王瑞刚 刘泽朋 香莲† 孙勇

(内蒙古民族大学物理与电子信息学院, 通辽 028043)

(2023 年 7 月 31 日收到; 2023 年 12 月 19 日收到修改稿)

热漫散射分析在凝聚态物理和材料科学研究中具有巨大潜力与实用性. 氧化钪 ( $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ) 独特的物理化学性质, 使其具有较高的研究和应用价值. 在室温 26 °C 下对  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  进行了 X 射线衍射实验. 其热漫散射强度呈明显的振动形状, 将  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  的全衍射背底强度方程展开, 并计算热漫散射强度的理论值, 直至计算到第 14 近邻原子 ( $r$  为 0.3816 nm) 全衍射背底强度图谱. 将理论与实验值拟合, 得到了最近邻原子至第 7 近邻原子所对应的原子间热振动相关效应值  $\mu$ , 最近邻原子到第 7 近邻原子距离  $r$  的值分别为 0.2067, 0.2148, 0.2161, 0.2671, 0.2945, 0.3229 和 0.3265 nm, 所对应的原子间热振动相关效应值  $\mu$  分别为 0.64, 0.63, 0.62, 0.61, 0.60, 0.58 和 0.57. 研究发现  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  热漫散射强度大小与原子的热振动密切相关, 对热漫散射强度振动形状影响最大的是第 7 近邻原子  $\text{Sc}_1\text{-Sc}_2$  间的热振动相关效应值  $\mu$ , 原子间热振动相关效应值  $\mu$  对研究材料的力热性质提供很重要的参数, 为下一步计算比热和原子间力常数打下基础, 其对于材料的力热方面的用途与发展有着至关重要的作用.

**关键词:**  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ; 热漫散射; 原子间热振动相关效应值**PACS:** 34.20.Cf, 61.05.Cp, 81.05.Je**DOI:** 10.7498/aps.73.20231241

## 1 引言

钪 (Sc) 是一种稀土元素, 与钇、镧系元素同族, 但钪元素又比较特殊, 很难与其他稀土元素成矿, 其在地壳中含量为 22—30 g/t.  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  作为钪化合物中的典型代表, 为制备其他钪系材料做出巨大贡献<sup>[1-3]</sup>.  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  具有铁锰矿结构, 属于立方晶系, 密度为 3.86 g/cm<sup>3</sup>, 具有熔点高、膨胀系数低、化学稳定性好等特点, 被广泛应用于固体燃料电池、催化剂、传感器、陶瓷材料等领域中. 现阶段, 固体氧化物燃料电池所使用的电解质主要为锆基固体电解质, 在锆基电解质中加入适量的  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ , 能够提高其在中低温下的导电率<sup>[4]</sup>.  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  推动的 Cu/ZnO 催化剂在特定的温度范围内将甲醇转化为活性良

好、稳定性良好的富氢气体<sup>[5]</sup>. Nakazono<sup>[6]</sup> 等研究发现, 在特定的条件下, 丁二醇被氧化钪催化为丁二烯. Sha 等<sup>[7]</sup> 将镧系元素掺杂  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ , 用于高灵敏度温度传感器, 研究了多重能量传递过程尤其是交叉弛豫与温度的关系, 发现氧化钪在制备传感器方面具有非常大的潜力. 将氧化钪掺杂在陶瓷材料内, 提高其电学性能<sup>[8,9]</sup>. 以  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  纳米粉为原料制备的  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  透明陶瓷是一种有很高应用价值的新型功能材料<sup>[10-18]</sup>. 杨丛松等<sup>[19]</sup> 制备了高强度  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  陶瓷, 并研究发现烧结体的晶粒越小, 抗压强度越高. Kong 等<sup>[20]</sup> 通过离子束溅射法制备了  $\text{Sc}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$  混合薄膜并测量其透射率和折射率, 研究发现随着  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  体积分数的改变, 混合薄膜的透射率和折射率也发生改变. 由此可见, 氧化钪在新材料、新能源的发展中充当着重要角色.

\* 内蒙古自治区自然科学基金 (批准号: 2018MS01007, 2022MS01014, 2023LHMS01011)、内蒙古民族大学博士启动基金 (批准号: BS625) 和内蒙古自治区直属高校基本科研业务费项目资助的课题.

† 通信作者. E-mail: nmmdxl@163.com

在 X 射线实验中, 各原子由于原子热振动导致产生了一定强度的热漫散射, 原子间热振动相关效应决定着热漫散射的振动形状, 而原子间距对原子热振动相关效应具有决定性作用<sup>[21-24]</sup>. Sakuma 等<sup>[25-29]</sup>通过中子衍射实验对热漫散射进行了大量的研究. Basar 等<sup>[24,30]</sup>分析了 KBr, ZnSe 的热漫散射, 并讨论了原子热振动相关效应值对原子间距离和温度依赖性. 香莲等<sup>[31-33]</sup>通过中子衍射实验解析了 PbS, PbTe, PbF 的热漫散射得出原子间相关效应值. 随后郭田田等<sup>[34]</sup>使用 X 射线衍射法解析了 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 热漫散射, 得出原子间热振动相关效应, 并进一步推导出原子间力常数. 氧化铈独特的性质, 众多学者专家对其性质进行研究, 但对其热漫散射强度解析尚未报道.

通常在衍射实验中, 观察晶体结构时, 背底强度会被去除, 但实际上在全背底强度里包含着热漫散射强度和 Compton 散射强度, 有时候却不能被忽略. 本文在室温 26 °C 下对 Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末进行 X 射线衍射, 在解析 Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 晶体结构基础上展开全衍射背底强度方程, 解析 Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的热漫散射强度, 得到各原子间热振动相关效应  $\mu$  的值, 通过  $\mu$  可以推导出原子间力常数, 进一步为计算声子色散和材料的比热大小提供可靠的参数.

## 2 热漫散射强度

### 2.1 理论方程

全衍射背底强度方程早在 1992 年就被报道, Sakuma<sup>[35]</sup>解析  $\alpha$ -AgI 的热漫散射强度, 并得出:

$$I_B = I_{\text{Diffuse}} + I_{\text{Incoh}}. \quad (1)$$

全衍射背底强度  $I_B$  由热漫散射强度  $I_{\text{Diffuse}}$  和 Compton 散射强度  $I_{\text{Incoh}}$  组成. 当晶体内原子秩序分布时:

$$\begin{aligned} I_B &= I_{\text{Diffuse}} + I_{\text{Incoh}} \\ &= I_e k N_0 \sum_S u_i f_i f_i^* (1 - e^{-2M_i}) \\ &\quad + I_e k N_0 \sum_i \sum_j \sum_{s'(j)}' u_i f_i f_j^* \\ &\quad \times \left[ e^{-(M_i + M_j)(1 - \mu_{r_{s(i)s'(j)}})} - e^{-(M_i + M_j)} \right] \\ &\quad \times Z_{r_{s(i)s'(j)}} S_{r_{s(i)s'(j)}} \\ &\quad + I_e k N_0 \sum_S u_i \sigma_{\text{Incoh}} + C, \end{aligned} \quad (2)$$

其中,

$$M_i = B_i (\sin \theta / \lambda)^2, \quad (3)$$

$$S_{r_{s(i)s'(j)}} = \frac{\sin(4\pi r_{s(i)s'(j)} \sin \theta / \lambda)}{4\pi r_{s(i)s'(j)} \sin \theta / \lambda}. \quad (4)$$

(2) 式中各参数物理意义如表 1 所示.

在 (2) 式中, 第 1 项由原子独立振动产生的强度, 第 2 项为原子间热振动相关效应产生的强度, 第 3 项为 Compton 散射强度, 最后一项为实验中非相干环境因素等所带来的影响; 式中  $\mu$  为表示原子间热振动相关效应值的,

$$\mu_{r_{s(i)s'(j)}} = \frac{2 \langle \Delta \mathbf{r}_{s(i)} \cdot \Delta \mathbf{r}_{s'(j)} \rangle}{\langle \Delta \mathbf{r}_{s(i)}^2 \rangle + \langle \Delta \mathbf{r}_{s'(j)}^2 \rangle}, \quad (5)$$

$\Delta \mathbf{r}_{s(i)}$  和  $\Delta \mathbf{r}_{s'(j)}$  表示原子热振动引起的原子到均衡位置的位移. 当原子独立振动时,  $\Delta \mathbf{r}_{s(i)}$  与  $\Delta \mathbf{r}_{s'(j)}$  无关,  $\langle \Delta \mathbf{r}_{s(i)} \cdot \Delta \mathbf{r}_{s'(j)} \rangle = \langle \Delta \mathbf{r}_{s(i)} \rangle \cdot \langle \Delta \mathbf{r}_{s'(j)} \rangle$ . 此时  $\langle \Delta \mathbf{r}_{s(i)} \rangle = 0$ ,  $\langle \Delta \mathbf{r}_{s'(j)} \rangle = 0$  即原子间热振动相关效应值  $\mu = 0$ , 当  $B_{s(i)} = B_{s'(j)}$ , 则有  $\frac{2\sqrt{B_{s(i)}B_{s'(j)}}}{B_{s(i)} + B_{s'(j)}} = 1$ , 所以  $\mu$  的取值范围是

$$0 \leq \mu_{r_{s(i)s'(j)}} \leq \frac{2\sqrt{B_{s(i)}B_{s'(j)}}}{B_{s(i)} + B_{s'(j)}} = 1. \quad (6)$$

表 1 (2) 式中各参数物理意义

Table 1. Physical meaning of each parameter in Eq. (2).

参数	物理意义	参数	物理意义
$k$	仪器参数	$N_0$	晶体内晶胞数
$u_i$	单位晶胞内 $i$ 原子数	$Z_{r_{s(i)s'(j)}}$	配位数
$f_i$	$i$ 原子散射因子	$r_{s(i)s'(j)}$	晶胞内 $i$ 原子与 $j$ 原子间距
$B_i$	$i$ 原子各向同性温度因子	$\sigma_{\text{Incoh}}$	非干涉性的原子散射截面
$I_e$	单个电子散射强度	$\theta$	散射角
$\lambda$	入射光线波长		

## 2.2 实验装置与结果

所选用实验装置为内蒙古民族大学化学与材料学院的日本理学 RIGAKU 的 X 射线粉末衍射仪, 选用的靶材为 Cu, 波长为 0.154 nm, 在室温 26 °C 下进行衍射角度为 15°—90°的衍射实验. 所使用的 Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末晶体选自 MACKLIN 公司生产, 其纯度不低于 99.5%, X 射线衍射实验图谱如图 1(a) 所示 [36]. 由于 X 射线衍射实验所处环境为非真空状态, 在去除空气散射的强度后剩余热漫散射强度部分如图 1(b) 所示. 可以看到, 随着衍射角度的不断增大, 热漫散射强度也不断增大, 且振动形状明显.

## 3 分析与讨论

在解析 Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 原子热振动的基础之上, 进一步计算热漫散射强度理论值. 在 26 °C 温度下, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末晶体内原子秩序分布, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 为立方晶系, 空间群为 *Ia* $\bar{3}$ , 晶格常数为  $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ ;  $a=b=c=0.9846$  nm, 单位晶胞中包含 32 个 Sc 原子和 48 个 O 原子 [36], 晶体结构相对复杂. 通过 Rietveld 晶体结构精修法 [37], 利用 RIETAN-2000 [38] 程序对其解析, 所得原子位置 ( $x, y, z$ ) 和原子热振动各向同性温度因子  $B$ , 参数如表 2 所列 [36].

考虑到最近邻原子到第 7 近邻原子间的热振动相关效应, Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的热漫散射强度为

$$\begin{aligned}
 I_B &= I_{\text{Diffuse}} + I_{\text{incOH}} \\
 &= I_{\text{ind,O}} + I_{\text{ind,Sc}_1} + I_{\text{ind,Sc}_2} + I_{1(\text{O-Sc}_2)} + I_{1(\text{Sc}_2\text{-O})} + I_{2(\text{O-Sc}_2)} + I_{2(\text{Sc}_2\text{-O})} + I_{3(\text{O-Sc}_1)} + I_{3(\text{Sc}_1\text{-O})} \\
 &\quad + I_{4(\text{O-O})} + I_{5(\text{O-O})} + I_{6(\text{O-O})} + I_{7(\text{Sc}_1\text{-Sc}_2)} + I_{7(\text{Sc}_2\text{-Sc}_1)} + I_{\text{inc,O}} + I_{\text{inc,Sc}_1} + I_{\text{inc,Sc}_2} \\
 &= I_e k N_0 u_O f_O f_O^* (1 - e^{-M_O}) + I_e k N_0 u_{\text{Sc}_1} f_{\text{Sc}_1} f_{\text{Sc}_1}^* (1 - e^{-2M_{\text{Sc}_1}}) + I_e k N_0 u_{\text{Sc}_2} f_{\text{Sc}_2} f_{\text{Sc}_2}^* (1 - e^{-2M_{\text{Sc}_2}}) \\
 &\quad + I_e k N_0 u_O f_O f_{\text{Sc}_2}^* \left[ e^{-(M_O+M_{\text{Sc}_2})(1-\mu_{1(\text{O-Sc}_2)})} - e^{-(M_O+M_{\text{Sc}_2})} \right] Z_{1(\text{O-Sc}_2)} S_{1(\text{O-Sc}_2)} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_{\text{Sc}_2} f_{\text{Sc}_2} f_O^* \left[ e^{-(M_{\text{Sc}_2}+M_O)(1-\mu_{1(\text{Sc}_2\text{-O})})} - e^{-(M_{\text{Sc}_2}+M_O)} \right] Z_{1(\text{Sc}_2\text{-O})} S_{1(\text{Sc}_2\text{-O})} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_O f_O f_{\text{Sc}_2}^* \left[ e^{-(M_O+M_{\text{Sc}_2})(1-\mu_{2(\text{O-Sc}_2)})} - e^{-(M_O+M_{\text{Sc}_2})} \right] Z_{2(\text{O-Sc}_2)} S_{2(\text{O-Sc}_2)} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_{\text{Sc}_2} f_{\text{Sc}_2} f_O^* \left[ e^{-(M_{\text{Sc}_2}+M_O)(1-\mu_{2(\text{Sc}_2\text{-O})})} - e^{-(M_{\text{Sc}_2}+M_O)} \right] Z_{2(\text{Sc}_2\text{-O})} S_{2(\text{Sc}_2\text{-O})} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_O f_O f_{\text{Sc}_1}^* \left[ e^{-(M_O+M_{\text{Sc}_1})(1-\mu_{3(\text{O-Sc}_1)})} - e^{-(M_O+M_{\text{Sc}_1})} \right] Z_{3(\text{O-Sc}_1)} S_{3(\text{O-Sc}_1)} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_{\text{Sc}_1} f_{\text{Sc}_1} f_O^* \left[ e^{-(M_{\text{Sc}_1}+M_O)(1-\mu_{3(\text{Sc}_1\text{-O})})} - e^{-(M_{\text{Sc}_1}+M_O)} \right] Z_{3(\text{Sc}_1\text{-O})} S_{3(\text{Sc}_1\text{-O})} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_O f_O f_O^* \left[ e^{-2M_O(1-\mu_{4(\text{O-O})})} - e^{-2M_O} \right] Z_{4(\text{O-O})} S_{4(\text{O-O})} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_O f_O f_O^* \left[ e^{-2M_O(1-\mu_{5(\text{O-O})})} - e^{-2M_O} \right] Z_{5(\text{O-O})} S_{5(\text{O-O})} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_O f_O f_O^* \left[ e^{-2M_O(1-\mu_{6(\text{O-O})})} - e^{-2M_O} \right] Z_{6(\text{O-O})} S_{6(\text{O-O})} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_{\text{Sc}_1} f_{\text{Sc}_1} f_{\text{Sc}_2}^* \left[ e^{-(M_{\text{Sc}_1}+M_{\text{Sc}_2})(1-\mu_{7(\text{Sc}_1\text{-Sc}_2)})} - e^{-(M_{\text{Sc}_1}+M_{\text{Sc}_2})} \right] Z_{7(\text{Sc}_1\text{-Sc}_2)} S_{7(\text{Sc}_1\text{-Sc}_2)} \\
 &\quad + I_e k N_0 u_{\text{Sc}_2} f_{\text{Sc}_2} f_{\text{Sc}_1}^* \left[ e^{-(M_{\text{Sc}_2}+M_{\text{Sc}_1})(1-\mu_{7(\text{Sc}_2\text{-Sc}_1)})} - e^{-(M_{\text{Sc}_2}+M_{\text{Sc}_1})} \right] Z_{7(\text{Sc}_2\text{-Sc}_1)} S_{7(\text{Sc}_2\text{-Sc}_1)} \\
 &\quad + I_e k N_0 (u_O \sigma_O + u_{\text{Sc}_1} \sigma_{\text{Sc}_1} + u_{\text{Sc}_2} \sigma_{\text{Sc}_2}) + C, \tag{7}
 \end{aligned}$$

式中,  $I_{\text{ind,O}}, I_{\text{ind,Sc}_1}, I_{\text{ind,Sc}_2}$  分别为 O, Sc<sub>1</sub> 和 Sc<sub>2</sub> 原子独立振动产生的强度;  $I_{1(\text{O-Sc}_2)}, I_{1(\text{Sc}_2\text{-O})}$  为最近邻原子间的相关效应强度;  $I_{2(\text{O-Sc}_2)}, I_{2(\text{Sc}_2\text{-O})}$  为第 2 近邻原子间的相关效应强度;  $I_{3(\text{O-Sc}_1)}, I_{3(\text{Sc}_1\text{-O})}$  为第 3

近邻原子间相关效应的强度,  $I_{4(\text{O-O})}, I_{5(\text{O-O})}, I_{6(\text{O-O})}$  分别为第 4, 5, 6 近邻原子间相关效应的强度;  $I_{7(\text{Sc}_1\text{-Sc}_2)}, I_{7(\text{Sc}_2\text{-Sc}_1)}$  为第 7 近邻原子间的相关效应强度;  $I_{\text{inc,O}}, I_{\text{inc,Sc}_1}, I_{\text{inc,Sc}_2}$  分别为 O, Sc<sub>1</sub> 和 Sc<sub>2</sub> 原

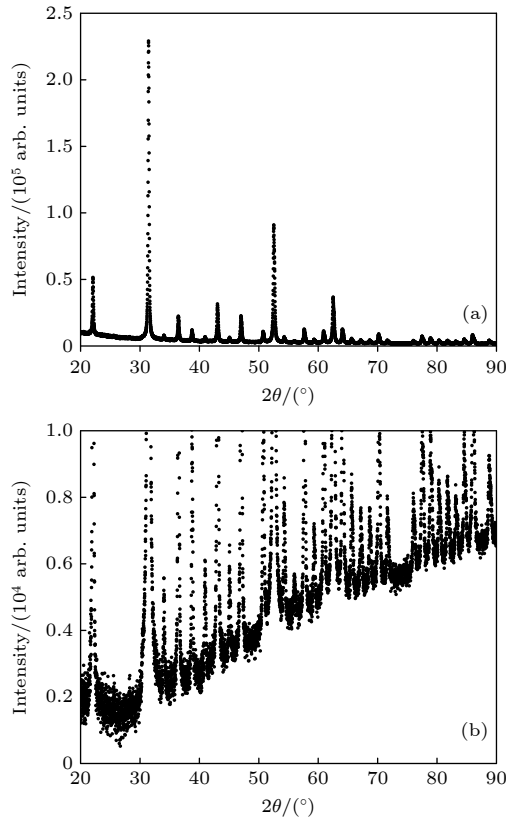


图 1 (a)  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  的 X 射线衍射实验图谱; (b)  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  的热漫散射强度图谱

Fig. 1. (a) X-ray diffraction experimental pattern of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ; (b) thermal diffuse scattering intensity spectrum of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ .

表 2  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  的晶体结构参数  
Table 2. Crystal structure parameters of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ .

	$x$	$y$	$z$	$B/\text{nm}^2$
$\text{Sc}_1$	0.2500	0.2500	0.2500	0.003329
$\text{Sc}_2$	0.4649	0	0.2500	0.011085
O	0.3928	0.1528	0.3802	0.009657

子 Compton 散射强度. 从国际 X 射线结晶学表 [39] 可以查询到 Sc 和 O 的原子散射因子  $f$ , 通过文献 [36] 可知参数  $k$ ,  $N_0$ ,  $u_i$ ,  $Z$ ,  $B$  和  $r_{s(i)s'(j)}$ . 将各参数代入 (7) 式, 得到热漫散射强度理论值, 在  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  独立振动产生的热漫散射强度中, Sc 原子独立振动产生的占绝大多数, 如图 2(a) 所示, 此现象的原因 Sc 原子的原子序数为 21, O 原子序数为 8, 原子序数越大, 原子的散射因子系数越高, 在独立振动时热漫散射强度越大. 图 2(b) 为  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  的 Compton 散射强度. 从图 2(c) 可以发现, 原子热振动相关效应产生的强度  $I_\mu$  决定着热漫散射的振动形状.

根据 (2) 式, 将各项参数代入, 进行计算从最

近邻原子到第 14 近邻原子 ( $r \leq 0.3618 \text{ nm}$ ) 热振动相关效应值的热漫散射强度. 图 3(a)–(f) 依次为最近邻原子、第 1—第 3 近邻原子、第 1—第 5 近邻原子、第 1—第 7 近邻原子、第 1—第 9 近邻原子和第 1—第 11 近邻原子的全衍射背底强度的理论值与实验值的比较图谱. 在 14 次对比之中, 选择代表性最强的 6 个图谱进行展示.

在图 3(a)–(c) 中, 在  $55^\circ$ – $90^\circ$  间热漫散射理论值呈直线状, 无振动形状. 在图 3(e), (f) 内, 在  $40^\circ$ – $50^\circ$  之间理论值明显低于实验值, 且在  $55^\circ$ – $70^\circ$  之间可以清晰地观察到理论值高于实验值, 在此之后实验值与理论值差异性渐不明显, 其余图谱

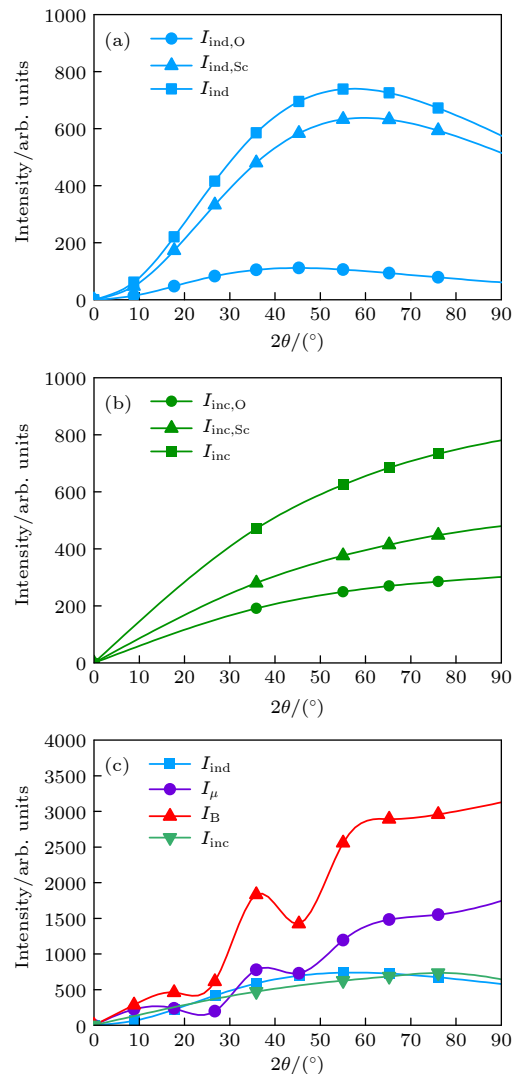


图 2 (a) 原子独立振动产生的热漫散射强度; (b)  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  的 Compton 散射强度; (c)  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  全衍射背底强度

Fig. 2. (a) Thermal diffuse scattering intensity generated by independent vibration each atom; (b) Compton scattering intensity of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ; (c)  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  full diffraction back-base intensity.



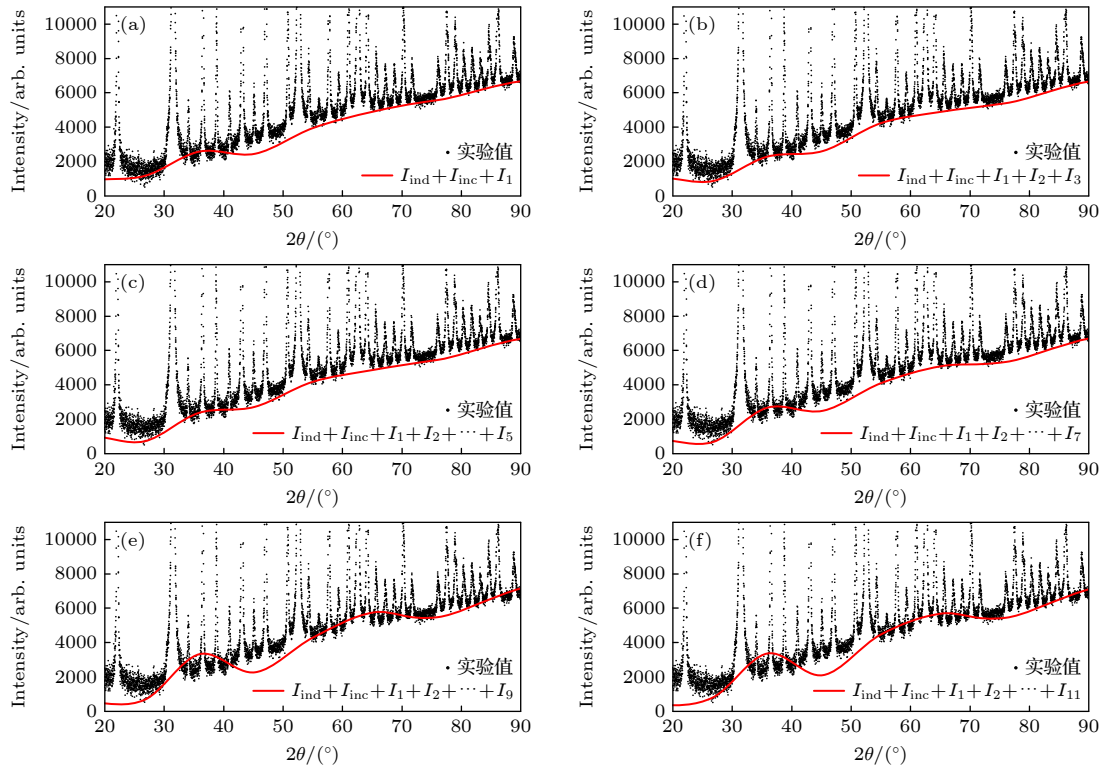


图 3  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  的全衍射背底强度的计算结果和实验结果的对比 (a) 最近邻原子; (b) 第 1—3 近邻原子; (c) 第 1—5 近邻原子; (d) 第 1—7 近邻原子; (e) 第 1—9 近邻原子; (f) 第 1—11 近邻原子

Fig. 3. Comparison between calculated and experimental results of the total diffraction back-base intensity of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ : (a) The nearest neighbor atom; (b) the 1–3 nearest neighbor atomic; (c) the 1–5 nearest neighbor atomic; (d) the 1–7 nearest neighbor atomic; (e) the 1–9 nearest neighbor atom; (f) the 1–11 nearest neighbor atom.

将不在文中展示. 图 3(d) 中热漫散射在  $47^\circ\text{--}73^\circ$  的范围内热漫散射振动形状明显, 且理论值整体上与实验值拟合度最高. 所以说明在  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  粉末晶体中, 第 7 近邻原子  $\text{Sc}_1\text{--Sc}_2$  相对于其他近邻原子对于振动形状的影响最明显, 同时也再次验证了原子热振动相关效应值在热漫散射振动形状中起主导

作用. 对于一些结构简单的晶体材料, 最近邻原子间的相关效应对振动波形影响最大, 而  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  却与其不同,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  晶胞内原子众多, 相对来说结构更为复杂,  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  晶体结构图如图 4 所示, 这是造成该现象的原因.

将相关参数代入 (2) 式, 进一步计算得到相关近邻原子的全衍射背底强度, 并将其于实验所测得的热漫散射强度值进行对比, 并通过拟合法进一步的得出相关效应值  $\mu$ , 相关数值如表 3 所列.

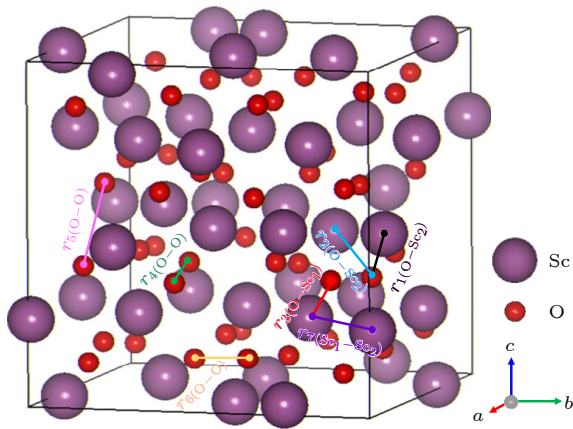


图 4  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  晶体结构模型和原子间距离

Fig. 4.  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  crystal structure model and interatomic distance.

表 3  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  的原子间热振动相关效应值  $\mu$

Table 3. Interatomic thermal vibration related effect values of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ .

	原子间距离 $r/\text{nm}$	配位数 $Z$	原子间相关效应值 $\mu$
O-Sc <sub>2</sub>	0.2067	2	0.64
O-Sc <sub>2</sub>	0.2148	1	0.63
O-Sc <sub>1</sub>	0.2161	1	0.62
O-O	0.2671	4	0.61
O-O	0.2945	1	0.60
O-O	0.3229	2	0.58
Sc <sub>1</sub> -Sc <sub>2</sub>	0.3265	6	0.57

图 5 为原子热振动相关效应引起的热漫散射强度图谱. 根据公式

$$I_{\mu} = I_e k N_0 \sum_i \sum_j \sum_{s'(j)}' u_i f_i f_j^* \times \left[ e^{-(M_i + M_j)(1 - \mu_{r_{s(i)s'(j)}})} - e^{-(M_i + M_j)} \right] \times Z_{r_{s(i)s'(j)}} S_{r_{s(i)s'(j)}} \quad (8)$$

计算得出各近邻原子的原子热振动相关效应引起的热漫散射强度. 从计算结果中可以发现第 7 近邻原子  $\text{Sc}_1\text{-Sc}_2$  的振动形状明显, 且振动幅度最大, 也说明对振动形状影响最大的是第 7 近邻原子  $\text{Sc}_1\text{-Sc}_2$  的相关效应.

图 6 给出了  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  在室温 26 °C 下原子间热振动相关效应值  $\mu$  与原子间距离  $r$  的图谱. 从图 6

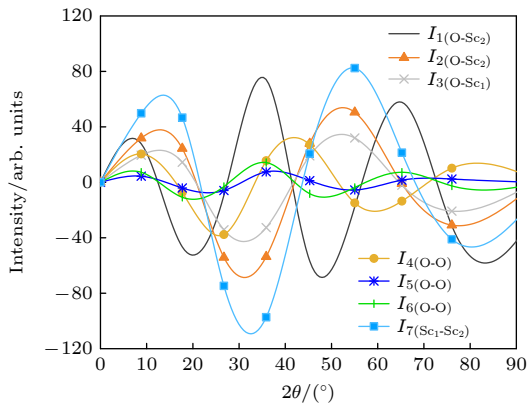


图 5  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  粉末晶体的各原子间相关效应产生的热漫散射强度

Fig. 5. Thermal diffuse scattering intensity generated by the inter atomic correlation effect of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  powder crystal.

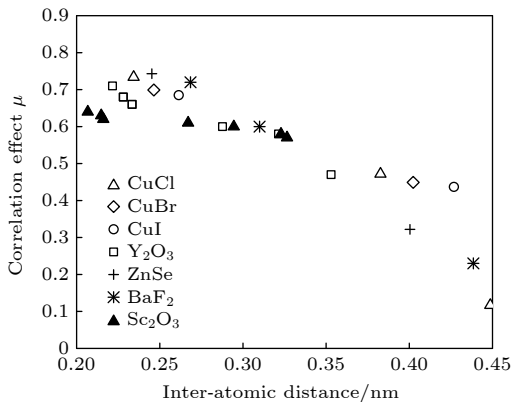


图 6  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  在室温 26 °C 下原子间热振动相关效应值  $\mu$  与原子间距离  $r$  的图谱, 以及与其他几种材料的对比

Fig. 6. Spectrum of the inter-atomic thermal vibration correlation effect values  $\mu$  and the inter-atomic distance  $r$  of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  at room temperature of 26 °C. The corresponding spectra of other materials are also given.

不难看出, 与其他几种已经报道的材料<sup>[30]</sup>变化趋势一致, 由此可说明本文计算结果的可靠性.

## 4 结 论

在室温 26 °C 下对  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  粉末晶体进行 X 射线衍射, 解析  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  热漫散射强度, 展开热漫散射强度方程, 将计算的理论与实验值相比较, 从而得第 7 近邻原子  $\text{Sc}_1\text{-Sc}_2$  间的相关效应对于热漫散射振动形状的贡献最大, 在第 8 近邻原子至更远的其他近邻原子间的相关效应对于热漫散射强度的影响不大, 可以直接忽略. 通常情况下最近邻原子或第 2 近邻原子间相关效应对热漫散射振动形状贡献最大, 而  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  却与其不同, 这是因为  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  的晶体结构复杂, 晶胞内原子众多, 且 Sc 和 O 的原子散射因子  $f$  的差距较大所导致的, 原子序数越大原子散射因子  $f$  越大, 对热漫散射振动形状贡献越明显. 通过理论和实验拟合得到最近邻原子至第 7 近邻原子的原子热振动相关效应值  $\mu$ , 分别为 0.64, 0.63, 0.62, 0.61, 0.60, 0.58 和 0.57, 为下一步计算原子间的力常数提供了理论基础, 也可以为验证其声子色散和比热等重要性质提供可靠的参考数据.

## 参考文献

- [1] Kulikov B P, Baranov V N, Bezrukh A I, Deev V B, Motkov M M 2018 *Metallurgist* **61** 1115
- [2] Tang C C, Chang H Q, Bao X G, Liu G Q, Liu K R 2012 *CJCR* **30** 680 (in Chinese) [唐冲冲, 常化强, 包晓刚, 刘贵清, 刘奎仁 2012 *中国稀土学报* **30** 680]
- [3] Masanori H, Kouji Y, Hiromasa Y, Toru H O 2008 *J. Alloys Compd.* **474** 124
- [4] Zhigachev A O, Rodaev V V, Zhigacheva D V, Lyskov N V, Shchukina M A 2021 *Ceram. Int.* **47** 32490
- [5] Pu Y C, Li S R, Yan S, Huang X, Wang D, Ye Y Y, Liu Y Q 2019 *Fuel* **241** 607
- [6] Nakazono K, Takahashi R, Yamada Y, Sato S 2021 *Mol. Catal.* **516** 111996
- [7] Sha H Y, He Z Z, Li C, Wang X Y, Jiang Q, Zeng F M, Su Z M 2019 *Opt. Mater.* **93** 39
- [8] Xue J M, Li F, Liu Y Q, Yang F, Hou Z X 2023 *Appl. Surf. Sci.* **613** 155984
- [9] Zhang C, Zhou Z X, Tang Z M, Ballo D, Wang C, Jian G 2022 *J. Alloys Compd.* **889** 161622
- [10] Poirot N, Bregiroux D, Boy P, Autret-Lambert C, Belleville P, Bianchi L 2015 *Ceram. Int.* **41** 3879
- [11] Toshiyuki M T I J L 2005 *J. Am. Ceram. Soc.* **88** 817
- [12] Jiang B X, Hu C, Li J, Kou H, Shi Y, Liu W B, Pan Y B 2011 *J. Rare Earths* **29** 951
- [13] Lu S Z, Yang Q H 2012 *Chin. Phys. B* **21** 047801

- [14] Lu X, Jiang B X, Li J, Liu W B, Wang L, Ba X B, Hu C, Liu B L, Pan Y B 2013 *Ceram. Int.* **39** 4695
- [15] Ma M Z, Dong L L, Jing W, Xu T, Kang B, Hou F 2019 *Proceedings of the 11th International Conference on High-Performance Ceramics* Kunming, China, May 25–29, 2019 p012080
- [16] Dai Z F, Liu Q, Hrenia D, Dai J W, Wang W, Li J 2018 *Opt. Mater.* **75** 673
- [17] Wang Y, Sun X D, Qiu G M 2007 *J. Rare Earths* **25** 68
- [18] Jacobsohn L G, Serivalsatit K, Quarles C A, Ballato J 2015 *J. Mater. Sci.* **50** 3183
- [19] Yang C S, Chen B, Wang F, Zheng J P, Zhao J X 2017 *Chin. Rare Metals* **41** 163 (in Chinese) [杨丛松, 陈博, 王芳, 郑剑平, 赵建翔 2017 稀有金属 **41** 163]
- [20] Kong P F, Pu Y T, Ma P, Zhu J L 2020 *Thin Solid Films* **714** 138357
- [21] Sakuma T, Shimoyama T, Basar K, Xianglian, Takahashi H, Arai M, Ishii Y 2005 *Solid State Ion* **176** 2689
- [22] Arai M, Sakuma T 2001 *J. Phys. Soc. Jpn.* **70** 144
- [23] Beni G, Platzman P M 1976 *Phys. Rev. B* **14** 1514
- [24] Basar K, Xianglian, Sakuma T, Takahashi H, Igawa N 2009 *ITB J. Sci. (Bdg.)* **41** 50
- [25] Sakuma T, Makhsum, Sakai R, Xianglian, Takahashi H, Basar K, Igawa N, Sergey A D 2015 *AIP Conf. Proc.* **1656** 020002
- [26] Wada T, Sakuma T, Sakai R, Uehara H, Xianglian, Takahashi H, Kamishima O, Igawa N, Sergey A D 2012 *Solid State Ion* **225** 18
- [27] Sakuma T, Mohapatra S R, Uehara H, Sakai R, Xianglian, Takahashi H, Igawa N, Basar K 2011 *Atom Indonesia* **36** 121
- [28] Sakuma T, Xianglian, Shimizu N, Mohapatra S R, Isozaki N, Uehara H, Takahashi H, Basar K, Igawa N, Kamishima O 2010 *Solid State Ion* **192** 54
- [29] Sakuma T, Xianglian, Siagian S, Basar K, Takahashi H, Igawa N, Kamishima O 2010 *J. Therm. Anal. Calorim.* **99** 173
- [30] Basar K, Siagian S, Xianglian, Sakuma T, Takahashi H, Igawa N 2008 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **600** 237
- [31] Xianglian, Zhao M L, Sakuma T, Igawa N 2015 *J. at. Mol. Sci.* **32** 499 (in Chinese) [香莲, 赵敏兰, 佐久间隆, 井川直树 2015 原子与分子物理学报 **32** 499]
- [32] Xianglian, Sakuma T, Mohapatra S R, Uehara H, Takahashi H, Kamishima O, Igawa N 2012 *Mol. Simul.* **38** 448
- [33] Xianglian, Basar K, Honda H, Siagian S, Ohara K, Sakuma T, Takahashi H, Igawa N, Ishii Y 2007 *Solid State Ion* **179** 776
- [34] Guo T T, Xianglian, Bao W X, Bao G Z 2018 *J. Light Scatter.* **30** 182 (in Chinese) [郭田田, 香莲, 包文秀, 包桂芝 2018 光散射学报 **30** 182]
- [35] Sakuma T 1992 *J. Phys. Soc. Jpn.* **61** 4041
- [36] Liu Z P, Wang R G, Xianglian, Bao G Z 2023 *J. Inner Mongolia Minzu Univ. (Nat. Sci.)* **38** 199 (in Chinese) [刘泽朋, 王瑞刚, 香莲, 包桂芝 2023 内蒙古民族大学学报 (自然科学版) **38** 199]
- [37] Rietveld H M 1967 *Acta Cryst.* **22** 151
- [38] Izumi F, Ikeda T 2000 *Mater. Sci. Forum* **399** 198
- [39] Lonsdale K 1962 *International Tables for X-Ray Crystallography* (Vol. III) (United Kingdom: Published by International Union of Crystallography) pp72–103

# Analysis of thermal diffuse scattering intensity of scandium oxide ( $\text{Sc}_2\text{O}_3$ )\*

Wang Rui-Gang    Liu Ze-Peng    Xiang-Lian<sup>†</sup>    Sun Yong

(College of Physics and Electronic Information, Inner Mongolia Minzu University, Tongliao 028043, China)

( Received 31 July 2023; revised manuscript received 19 December 2023 )

## Abstract

Atoms in crystals will generate thermal diffuse scattering during thermal vibration. Thermal diffuse scattering analysis has great potential applications in condensed matter physics and material science research. Scandium oxide ( $\text{Sc}_2\text{O}_3$ ) has unique physical and chemical properties, which make it have high research and application value. In this work, X-ray diffraction experiment is performed on  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  at room temperature of 26 °C. The thermal diffuse scattering intensity exhibits a clear vibrational shape. The full diffraction back-based intensity equation of  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  is expanded, and the theoretical value of the thermal diffuse scattering intensity is calculated until the full diffraction back-based intensity spectrum of the 14th nearest atom ( $r = 0.3816 \text{ nm}$ ) is calculated. By fitting the theoretical value to the experimental value, we can see the inter-atomic thermal vibration correlation effect  $\mu$  values corresponding to the nearest neighbor atom to the 7th nearest neighbor atom, the values of distance  $r$  from the nearest neighbor atom to the 7th nearest neighbor atom are 0.2067, 0.2148, 0.2161, 0.2671, 0.2945, 0.3229 and 0.3265nm, respectively, corresponding to their inter-atomic thermal vibration correlation effect  $\mu$  values of 0.64, 0.63, 0.62, 0.61, 0.60, 0.58 and 0.57. Research result shows that the intensity of thermal diffuse scattering in  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  is closely related to the atomic thermal vibration, the most significant influence on the vibration shape of thermal diffuse scattering intensity is the thermal vibration correlation effect between the 7th nearest atom  $\text{Sc}_1\text{-Sc}_2$ . Inter-atomic thermal vibration correlation effect  $\mu$  values will provide important parameters for studying the mechanical and thermal properties of materials, laying the foundation for the next-step calculating specific heat and interatomic force constant, and thus playing a crucial role in the use and development of materials.

**Keywords:**  $\text{Sc}_2\text{O}_3$ , thermal diffuse scattering, inter-atomic thermal vibration correlation effect values

**PACS:** 34.20.Cf, 61.05.Cp, 81.05.Je

**DOI:** [10.7498/aps.73.20231241](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231241)

\* Project supported by the Natural Science Foundation of Inner Mongolia, China (Grant Nos. 2018MS01007, 2022MS01014, 2023LHMS01011), the Doctor Research Start-up Fund of Inner Mongolia Minzu University, China (Grant No. BS625), and the Basic Scientific Research Projects in Colleges and Universities directly under Inner Mongolia Autonomous Region.

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [mmmdxl@163.com](mailto:mmmdxl@163.com)



## 氧化钪( $\text{Sc}_2\text{O}_3$ )的热漫散射强度解析

王瑞刚 刘泽朋 香莲 孙勇

### Analysis of thermal diffuse scattering intensity of scandium oxide ( $\text{Sc}_2\text{O}_3$ )

Wang Rui-Gang Liu Ze-Peng Xiang-Lian Sun Yong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 063401 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20231241

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231241>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

铥原子收敛于 $4f13(2F7/2o)6s(7/2, 1/2)4o$ 和 $4f13(2F7/2o)6s(7/2, 1/2)3o$ 偶宇称里德伯系列能级的电子关联效应

Electron correlation effects in even Rydberg series converging to  $4f13(2F7/2o)6s(7/2, 1/2)4o$  and  $4f13(2F7/2o)6s(7/2, 1/2)3o$  of thulium atom

物理学报. 2018, 67(18): 183102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180797>

$\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 纳米材料的尺寸调控与光致发光特性

Size Regulation and Photoluminescence Properties of  $\beta$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  Nanomaterials

物理学报. 2020, 69(10): 108102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200158>

微合金化元素Cu/Ti在 $L1_2$ - $\text{Al}_3\text{Sc}/\text{Al}$ 界面的偏析行为

Different segregation behavior of alloying elements Cu/Ti at  $L1_2$ - $\text{Al}_3\text{Sc}/\text{Al}$  interface

物理学报. 2022, 71(8): 088101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212156>

原子级控制的约瑟夫森结中 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 势垒层制备工艺

Preparation of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  tunnel barrier layer in atome-level controlled Josephson junction

物理学报. 2022, 71(21): 218102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220820>

弛豫铁电体弥散相变与热滞效应的伊辛模型

Diffuse phase transition and thermal hysteresis in relaxor ferroelectrics from modified Ising model

物理学报. 2021, 70(11): 110501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202019>

引入籽晶层的物理溅射生长 $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 外延薄膜特性研究

Characteristics of  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  epitaxial films on seed layer grown by magnetron sputtering

物理学报. 2020, 69(22): 228103 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200810>