

气相急冷 Fe-Pd 合金的 穆斯堡尔谱研究¹⁾

张胜良 翟宏如

南京大学物理系, 南京, 210008

1990 年 4 月 10 日收到

本文研究了利用气相急冷方法获得的非平衡 bcc 和 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金在室温和 4.2K 下的穆斯堡尔谱, 用拟谱方法获得了超精细相互作用参量及超精细场分布 $P(H)$. 在 bcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金中, 超精细场随 x 增加而稍有增加, 而在 fcc 相合金中, 超精细场随 x 增加而减少. 用半经验公式分析了 Fe-Pd 合金中超精细场和磁矩之间的相互关系.

PACC: 7680; 7550B

一、引 言

气相急冷方法, 因其很高的冷却速度, 在制备具有非平衡结构的晶态或非晶态材料方面是极为有效的^[1]. 在 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的平衡相图上^[2], 液相线以下, γFe 和 Pd 之间呈现的是连续的 fcc 型固溶体, 常温下 fcc 结构区域缩小为 $x = 0.5-1.0$, 并出现 FePd 和 FePd_3 两个有序相区域; 另外, 有一点引人注意的是 bcc 单相区域非常狭窄, 室温下几乎不存在单一的 bcc 相固溶体. 作者^[3]利用气相急冷技术之一的溅射淀积方法获得了非平衡的 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金, 浓度为 $0 < x < 0.25$ 时, 合金为单一的 bcc 相, $0.3 < x < 1.0$ 时, 生成单一的 fcc 相, 而在 $0.25 < x < 0.3$ 时, 形成 bcc 和 fcc 的混合相. 与平衡相图作比较, 在气相急冷的 Fe-Pd 合金中, 形成了高浓度的 bcc 相固溶体, fcc 相固溶体得到了扩张, 而且抑制了合金有序相的形成.

对 Fe-Pd 合金中非平衡相磁性的研究表明^[3], 在 4.2 K 时, bcc 相 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的平均原子磁矩随 x 增加稍有增加, 在 $x \approx 0.2$ 处达到最大值; fcc 相 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的平均原子磁矩随 x 增大而线性地减小. 本文对 bcc 和 fcc 相 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 系列合金, 在室温和 4.2 K 下测量了穆斯堡尔谱, 研究了超精细场、同质异能移及磁矩平均取向随 x 的变化, 讨论了超精细场与磁矩之间的相互关系.

二、实 验

非平衡的 bcc 和 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金是用溅射淀积方法制备的. 样品为厚度约为

1) 本文涉及的穆斯堡尔谱测量系作者之一(张胜良)在日本京都大学时所作.

$2 \mu\text{m}$ 的薄膜。用通常的透射法测量了样品在室温和 4.2 K 下的穆斯堡尔谱, 放射源为 $^{57}\text{Co}/\text{Cu}$, γ 射线垂直穿过薄膜表面。用 $\alpha\text{-Fe}$ 标定等加速穆斯堡尔谱仪的速度。

三、结果与讨论

图 1 为 bcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金在 $T = 290 \text{ K}$ 时的 ^{57}Fe 穆斯堡尔谱, 都是铁磁性六线谱。bcc 相的谱线较为锐利, 区别于许多其他 Fe 基合金, 最外侧谱线不出现可分辨的精细结构^[4]。随 x 的增加, 谱线半宽度逐渐增加, 这可归因于在中心的 ^{57}Fe 原子周围的混乱原子排列造成的超精细场分布, 这个分布是由 Fe 原子近邻上不同的配位 Fe 原子数决定的。这里的谱线加宽要比在非晶态合金中出现的谱线加宽小得多^[5], 表明超精细场分布较窄。

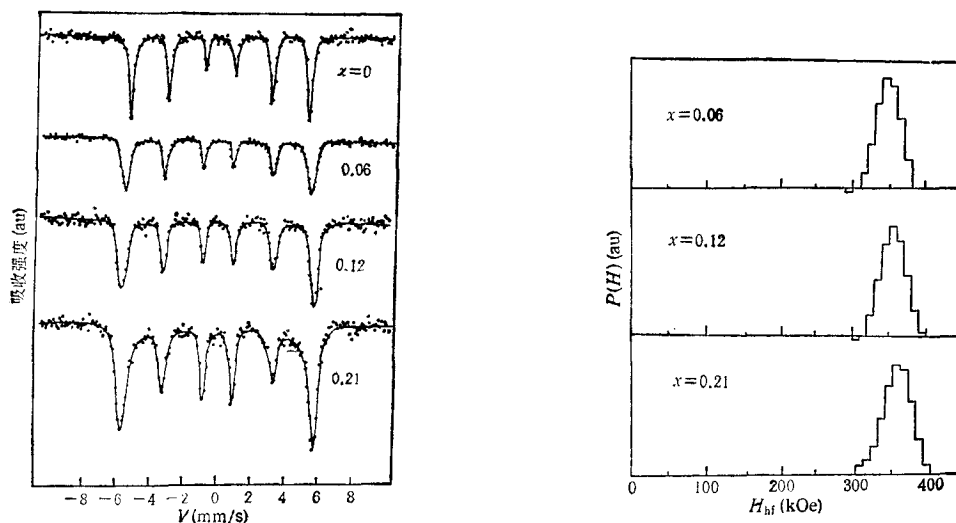
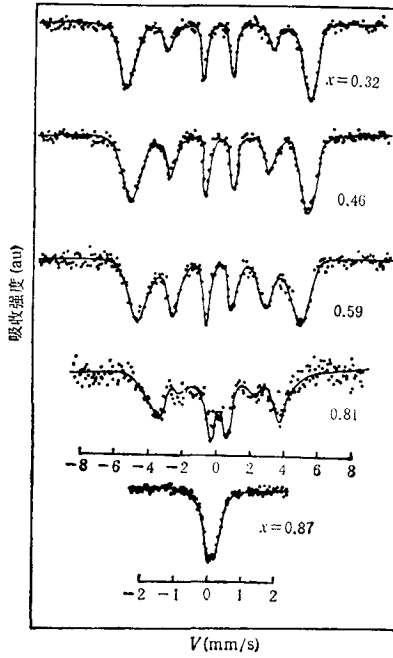
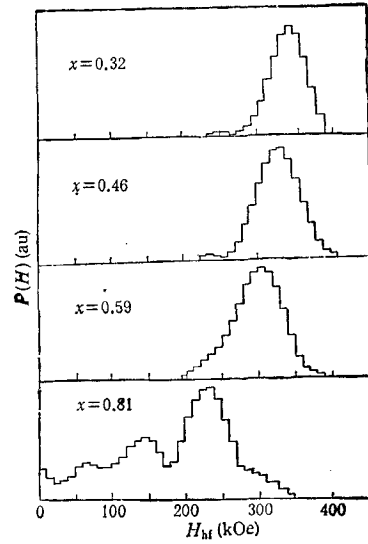


图 1 bcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的穆斯堡尔谱 $T = 290 \text{ K}$

图 2 bcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的超精细场分布 $T = 290 \text{ K}$

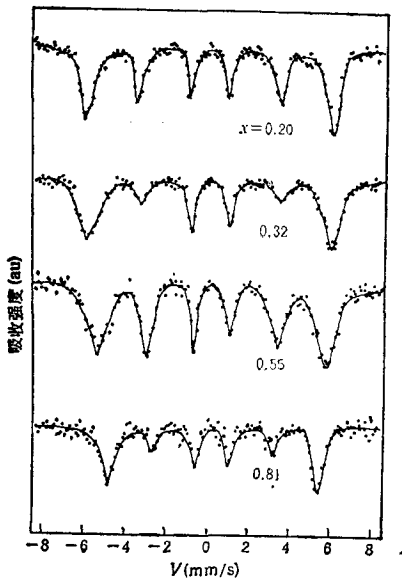
每个成分的穆斯堡尔谱用一系列具有不同塞曼分裂的 6 条洛伦兹曲线的迭加来拟合, 因而得到超精细场的分布^[6]。在谱分析过程中, 每条洛伦兹曲线的半宽度约为 0.25 mm/s , 选择的平滑因数约为 50^[6], 而同质异能移及第二、五峰与其他峰的强度比作为可调节参量, 直至获得最佳的拟合。为简单起见, 忽略了电场梯度的贡献。图 2 为获得的 bcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的超精细场分布曲线。在 $x < 0.2$ 时, 随着 x 增加, 超精细场分布曲线的主峰位置向高场侧稍有移动。

图 3 为 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金在 $T = 290 \text{ K}$ 时的穆斯堡尔谱。 $x < 0.6$ 时, 谱线和 bcc 相合金一样同为铁磁性六线谱, $0.6 < x < 0.85$ 时, 谱线为顺磁性谱迭加于铁磁性谱之上的混合谱, $x > 0.85$ 时, 铁磁性消失, 谱线为没有超精细场分裂的顺磁谱。谱线半宽度的增加同样归因于超精细场的分布, 如图 4 所示。随着 Pd 含量 x 的增加, 超精细场分布的主峰位置逐渐移向低场侧。 $x > 0.6$ 的合金中可检测到低场分量。在 $x = 0.81$ 的样品中, 穆斯堡尔谱的第二、五峰强度趋于零, 说明在铁磁性消失之前容易出现垂直各向异性,

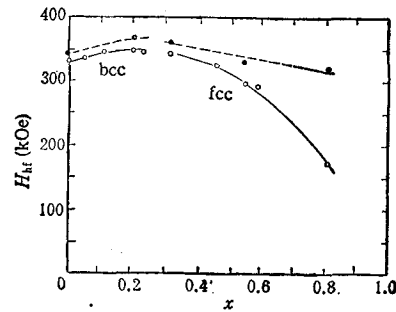
图3 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的穆斯堡尔谱 $T = 290\text{K}$ 图4 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的超精细场分布 $T = 290\text{K}$

这可能是由于影响垂直各向异性出现的退磁场作用减弱的缘故。这个现象与文献[7]中观察到的结果是一致的。

图5为 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金在4.2 K下的穆斯堡尔谱,与室温下的穆斯堡尔谱相比, $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金在低温下均变为铁磁性的。通过解谱分析得到的 bcc 和 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的平均超精细场, \bar{H}_{hf} , 与成分的关系示于图6中。在 bcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金中, \bar{H}_{hf} 随 x 增加而缓缓增大,而在 fcc 相合金中, \bar{H}_{hf} 随 x 增加而逐渐减少。值得注意的是,当合金结构从 bcc 向 fcc 过渡时,超精细场没有很大的不连续性,最多只是在谱线宽度上略有增加。

图5 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的穆斯堡尔谱 $T = 4.2\text{K}$

在 Fe 合金中, Fe 原子核处的超精细场可

图6 bcc 和 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的平均超精细场 \bullet 为 4.2K; \circ 为 290K; 虚线为计算曲线

用下列半经验公式来描述^[8]:

$$H_{hf} = a\mu_{Fe} + b\mu_{nn}, \quad (1)$$

式中等号右端第一项为 Fe 原子的 3d 电子的极化作用引起的贡献, 第二项为邻近原子的贡献, 因为对于金属磁性体, 作为传导电子的 4s 电子, 不仅受自身 d 电子的影响, 而且受邻近原子磁矩的极化影响. μ_{Fe} 为 Fe 原子磁矩, μ_{nn} 为邻近原子的平均磁矩, 因为在近邻上, 除了 Fe 原子以外还有其他原子, Fe 原子和其他原子的比例体现合金的成分, 所以 μ_{nn} 通常用合金的平均原子磁矩来代替. a, b 为两经验常数. 对 bcc Fe 基合金, a, b 分别约为 $70 \text{ kOe}/\mu_B$ 和 $80 \text{ kOe}/\mu_B$ ^[9].

将 fcc 相 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的平均原子磁矩随成分 x 的变化关系^[3] 外推至 $x=0$ 和 1.0, 可知在高浓度的 fcc 相 Fe-Pd 合金中, Fe 和 Pd 原子的磁矩分别为约 $2.8 \mu_B$ 和 $0.4 \mu_B$, 且与成分无关. 假定 Pd 原子在 bcc 相 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金中具有与在 fcc 相合金中相同的磁矩大小, 可知在 bcc 相 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金中, Fe 原子磁矩随 x 增大而增大, 在 $x \approx 0.2$ 处达到约 $2.8 \mu_B$.

运用上述的 (1) 式和对 bcc 相 Fe 基合金的两个经验常数, 由 bcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的平均原子磁矩和 Fe 原子磁矩数值, 可以计算出 bcc 相合金的超精细场随 x 的变化关系, 计算结果与实验是一致的. 从 (1) 式还可见, Fe 原子磁矩或平均原子磁矩的减少都将导致超精细场的减少. 在 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金中, 虽然 Fe 原子磁矩为 $2.8 \mu_B$, 且不随成分 x 改变, 但由于平均原子磁矩随 x 的增加而减少, 因而导致了超精细场的减少. 依据平均原子磁矩、Fe 原子磁矩以及平均超精细场的数据, 对 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金, 可以得出 a, b 的取值分别为 $a = 104 \text{ kOe}/\mu_B$ 和 $b = 34 \text{ kOe}/\mu_B$, 与 Fe-Ni 和 Fe-Pt 合金的结果^[10,11] 比较, 这两个数值是合理的.

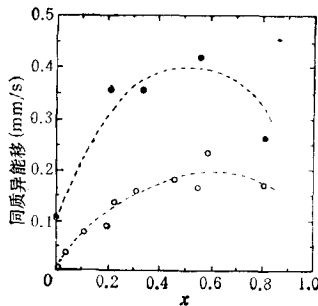


图 7 bcc 和 fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的同质异能移
· 为 4.2K; ○ 为 290K

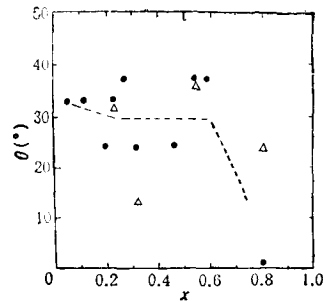


图 8 溅射淀积的 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金的原子磁矩取向与膜面法线方向之间的平均夹角 ● 为 290K; △ 为 4.2K

图 7 为拟谱得到的一部分样品的同质异能移与成分 x 的关系. 同超精细场一样, 在 bcc 和 fcc 相之间的过渡区域上, 同质异能移没有出现跳跃性的变化. 室温和 4.2 K 下的同质异能移的成分依赖关系基本上是相似的, 由于二次 Doppler 效应, 4.2 K 下的同质异能移相对于室温下的曲线向上作了一个位移.

根据穆斯堡尔谱学原理, γ 射线与原子磁矩取向的平均夹角为

$$\bar{\theta} = \arcsin \left[\frac{6A_{2,5}/A_{1,6}}{4 + 3A_{2,5}/A_{1,6}} \right]^{1/2}, \quad (2)$$

$A_{2,5}$ 和 $A_{1,6}$ 分别为第二、五峰和第一、六峰的强度。利用 (2) 式计算得到了 $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ 合金中原子磁矩的平均取向同成分的关系, 如图 8 所示。在我们的实验中, 由于 γ 射线垂直穿过薄膜表面, 所以 $\bar{\theta}$ 为磁矩平均取向与膜面法线方向之间的夹角。从图 8 看到, $\bar{\theta}$ 均小于 40° , 说明原子磁矩倾向于与薄膜表面垂直。在 $x = 0.81$ 的样品中, 室温下出现了完全的垂直各向异性。在溅射淀积的薄膜中, 这种垂直各向异性可能与在淀积期间由自遮蔽效应产生的柱状结构有关^[12]。

- [1] S. Mader, *J. Vac. Sci. Tech.*, 2(1965), 35.
- [2] T. B. Massalski, Binary Alloy Phase Diagram, American Society of Metals, Ohio, (1986), p. 1093.
- [3] S. L. Zhang, K. Sumiyama and Y. Nakamura, *Trans. Japan Inst. Metals, Supplement*, 29(1988), 359.
- [4] I. Vince and I. A. Campbell, *J. Phys. F*, 3(1973), 647.
- [5] K. M. Unruh and C. L. Chien, *Phys. Rev.*, B30(1984), 4908.
- [6] J. Hesse and A. Rubartsch, *J. Phys. E*, 7(1974), 526.
- [7] 志贺正幸、纪川健、隅山兼治、中村阳二, 日本应用磁气学会志, 9(1985), 187.
- [8] M. Shiga and Y. Nakamura, *J. Phys. Soc. Jap.*, 40(1976), 1295.
- [9] M. Shiga and Y. Nakamura, *J. Phys. Soc. Jap.*, 49(1980), 528.
- [10] M. Shiga, Y. Maeda and Y. Nakamura, *J. Phys. Soc. Jap.*, 37(1974), 363.
- [11] K. Sumiyama, M. Shiga, Y. Kobayashi, K. Nishi and Y. Nakamura, *J. Phys. F*, 8(1978), 1281.
- [12] 星阳一, 直江正彦, 山中俊一, 日本电子通信学会论文志, J65-C(1982), 921.

MÖSSBAUER EFFECT OF VAPOR QUENCHED Fe-Pd ALLOYS

ZHANG SHENG-LIANG ZHAI HONG-RU

Department of Physics, Nanjing University, Nanjing, 210008

(Received 10 April 1990)

ABSTRACT

Mössbauer spectra were taken at 4.2 K and 290 K for the bcc and fcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ alloys produced by vapor quenching. The hyperfine interaction parameters and hyperfine field distribution curves were obtained with spectrum fitting method. With increasing x , the average hyperfine field, H_{hf} increases in bcc $\text{Fe}_{1-x}\text{Pd}_x$ alloys, while H_{hf} decreases in fcc alloys. The concentration dependence of H_{hf} can be explained by using a semi-empirical formula.

PACC: 7680; 7550B