

Fe₃Si 在低温下的自旋波研究

陶 昉 严启伟 沈志工

(中国科学院物理研究所)

P. v. Blanckenhagen

(Kernforschungszentrum Karlsruhe, FRG)

林 虹

(中国原子能科学研究院)

林 泉

(中国科学院物理研究所)

1986年6月25日收到

提 要

用中子相干非弹性散射测量了 Fe₃Si 在 14 K 的自旋波色散关系。从自旋波二次方色散关系得到低温下自旋波劲度系数 $D_0 = 270 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^2$ 。用 Heisenberg 模型可进一步导出 Fe₃Si 的有效交换积分 J_{eff} 。从磁化强度的温度依赖关系也获得了一个自旋波劲度系数 $D_m(\rho)$ 。从两种不同方法获得的劲度系数的比较中发现在 Fe₃Si 中可能存在着 Stoner 激发。与早先工作相联系,本文还给出了从 14 K 直到居里温度自旋波劲度系数 D 的温度依赖关系。

一、引 言

Fe₃Si 是一个被广泛研究了的 3d 磁体。它的有序相为 DO₃ 结构,并在 1200°C 附近存在一个有序-无序转变。在 550°C 以下是铁磁的^[1]。1980 年本文部分作者用中子非弹性散射沿 Fe₃Si 晶体三个主轴方向,即 [001]、[110] 和 [111] 测量了它的自旋波色散关系曲线^[2]。室温下一个很宽的能量范围,例如直到 40 meV,磁激子能量 $\hbar\omega$ 与波矢量 q 均遵守二次方关系。沿三个主轴方向的自旋波劲度系数 D 具有相同数值 ($240 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^2$),即在实验误差范围内为各向同性。同时,在室温以上直到接近居里温度研究了自旋波色散曲线随温度的关系。之后不久,在居里温度附近及其以上,本文部分作者继续研究了在 Fe₃Si 中是否存在高于 T_c 的自旋波问题^[3]。鉴于对于 Fe 中高于 T_c 的自旋波实验结果的严重争论^[4,5],以及争论双方都认为在用中子非弹性散射实验中需采用常动量扫描方式才能最后鉴别高于 T_c 的自旋波的存在,作者在这项研究中作了大量的常动量扫描,在 T_c 以上测到了自旋波,尽管它们对中子非弹性散射截面变得很小。 T_c 附近自旋波的研究,大大深化了人们对于 3d 合金的巡游电子磁性的认识,近几年来它一直是中子非弹性散射实验

研究中的一个活跃课题。与 Oak Ridge 等人实验结果相反, Brookhaven 实验室则表明不存在这种高于 T_c 的自旋波。

自旋波实验研究的另一方面,则是测量低温下的色散关系,由此将获得 0K 附近的铁磁材料的劲度系数 D_0 ,这是从元激发角度来研究铁磁体的重要参量。分别通过 Heisenberg 模型或 Stoner 模型,还可由它导出材料中平均交换积分或由于交换作用导致自旋向上和向下能带之间的能隙。同时,从磁化强度在低温区随温度变化的磁测结果,也可获得 0K 的自旋波劲度系数 D_0 ,这是从另一角度对自旋波的研究。这两种劲度系数的比较与分析,同样也深化着我们对巡游磁性的认识。

近两年投入运行的北京中子散射三轴谱仪是测量声子和磁激子(即自旋波)色散关系曲线的专门仪器。于 1985 年底又初具 14 K 的低温条件,这样, Fe_3Si 在 14 K 自旋波色散曲线的实验研究,就成为在国内用中子非弹性散射研究磁激子色散曲线的一个合适课题。

本文除了报道最近所获得的低温下自旋波不少有趣的结果以外,还与过去在 Fe_3Si 的室温及其以上的结果有机地联系起来,给出了几个重要参量的温度依赖关系,从而扩展了低温结果的意义。

二、样品及实验条件

本文涉及的工作仅限于研究 Fe_3Si 的有序相,即具有 D_3O 结构的相。在这种点阵中有两种不同 Fe 原子晶位,相应的原子磁矩分别为 $2.25 \mu_B$ 和 $1.07 \mu_B$ 。所用样品在 1100°C 退火三天,随后以 $12^\circ\text{C}/\text{h}$ 的速率冷却下来。从最初由两块孪晶组成的、嵌镶度为 1.5° 的大块样品中,利用中子照相技术和摇动曲线测量,大致区分了两个孪晶的几何位置,用电火花切割获得了一块长约 2 cm、截面积约 0.5 cm^2 的、不含孪晶的小块晶体。其嵌镶度为 0.4° 。

在 Fe_3Si 磁激子色散曲线的测量中,晶体在三轴谱仪的样品台上以 $[1\bar{1}0]$ 晶轴为铅垂取向。14 K 的低温条件是使用氦致冷机获得的。晶体在低温容器内的取向和低温下晶格常数 a_0 的确定分两步进行,即先在室温将样品 $[1\bar{1}0]$ 晶轴在一分的精度范围内调好,并测出一、两个磁激子峰与以前结果核对。然后将低温容器罩上,把温度降为 14 K。在正式测量 14 K 磁激子色散曲线以前,在晶体取向及谱仪所有其它参量不变的情况下,仅调整所输入的晶格常数 a_0 这唯一参量,使几个晶面的 Bragg 峰位的计算值与测量值相符。

磁激子色散曲线测量中,将入射中子能量固定为 14.7 meV,即把入射中子的波长固定为 2.44 \AA ,然后测量散射中子的能量和动量。单色器和分析器均使用热解石墨的(002)面,同时使用石墨过滤器以滤掉入射中子束中的二次谐波。

磁激子(以及声子)在低温条件下色散曲线的实验研究,由于它们热占有数的大幅度下降,因而它们对中子的非弹性相干散射截面也变得很小,从而使测量变得十分困难。因此已发表的磁激子色散关系的工作多是在室温下进行的。而把低温下磁激子色散的实验研究视为反映研究水平的一个重要标志。考虑到在 14 K 时磁激子产生的散射截面比磁激子湮灭的要相对地大,在我们的实验研究中,均采用磁激子产生的散射过程。

三、结果与分析

这里给出的实验结果大致分三部分,即 14 K 下的磁激子及其色散关系;劲度系数 D 、磁化强度 M 等参量的温度依赖;几个附带结果,例如磁激子散射截面、中心峰、晶格常数的某些结果。

1. 14 K 下的磁激子及其色散关系

图 1 给出了在磁激子产生条件下 14 K 的三个典型的中子相干非弹性散射的共振峰。纵坐标为中子计数 I , 横坐标是以 THz 为单位的磁激子能量。测量选用倒格点 (111), 为避免横声学声子的干扰, 测量所选磁激子的传播方向为 [111] 方向。扫描均采用常动量方式进行。图 1 中的 $q_{[111]}$ 即表示沿 [111] 方向传播的磁激子的简约波矢, 在每个单独扫描中它们均固定不变。由图 1 容易看出, 随着简约波矢 $q_{[111]}$ 的增加, 即磁激子准动量的增加, 共振峰的中心所相应的能量即磁激子的能量 $\hbar\omega$ 迅速向大能量方向移动。一系列的共振峰(它们是由逐个递增的、固定动量或简约波矢来扫描能量所获得)的中心峰位即磁激子的能量 $\hbar\omega_i$ 与所对应的简约波矢 q_i 就给出了色散关系。

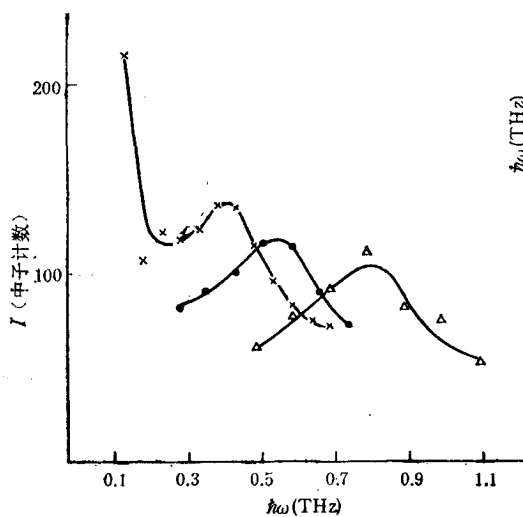


图 1 Fe_3Si 14 K 的几个典型磁激子

×—— $q_{[111]} = 0.04$; ●—— $q_{[111]} = 0.045$;
 Δ—— $q_{[111]} = 0.055$

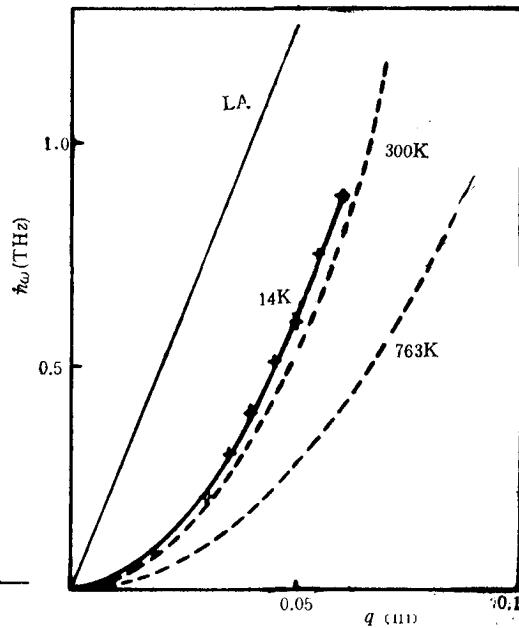


图 2 Fe_3Si 的磁激子色散曲线

图 2 的实线是 Fe_3Si 在 14 K 时的磁激子色散曲线。曲线上的实验点均已经过了分辨率修正。所谓分辨率修正, 是扣除由于中子束不是理想单色束、样品不是理想晶体, 即谱仪不具理想分辨率所造成的测量误差。这里使用了法国科学家 B. Hennion 的三维分辨

率修正程序。为了与以前工作对比和联系,这里同时给出了室温及 763 K 长波磁激子的色散曲线,分别用虚线和破折线表示。标有 LA 的一条直线是沿 [111] 晶轴的纵声学声子的色散曲线。

如 Bloch 自旋波理论预期那样,在低温和长波条件下,磁激子的色散关系能以最简化形式

$$\hbar\omega = D(0)q^2 \quad (1)$$

来表达。 $D(0)$ 就是这个低温下自旋波劲度系数。由于 Fe₃Si 的居里温度 T_c 高达 823 K,故我们可把 14 K 的劲度系数近似为 0K 的劲度系数 $D(0)$ 而不会带来太大的误差。用 (1) 式对 14 K 色散曲线实验拟合,得到 Fe₃Si 的低温劲度系数 $D(0)$ 为

$$270 \pm 10 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^2.$$

现在借助于这个 $D(0)$ 值,对 Fe₃Si 内的交换作用作某种近似的推导。严格说,作为 3d 合金,应当用能带模型来讨论 Fe₃Si。限于计算的难度,这里不作这种讨论。但为了方便和作为一种近似,这里仍用 Heisenberg 模型来作初步讨论,并借用对无序合金的公式。因而这些结果只有定性或半定量的意义。在 3d 无序合金中,由下面公式将自旋波劲度系数 $D(0)$ 与有效交换积分 J_{eff} 相联系:

$$D(0) = \frac{1}{3} Z r_0^2 \cdot J_{\text{eff}} \cdot \bar{S}. \quad (2)$$

这里 Z 是第一近邻的配位数, r_0 是第一近邻的距离, \bar{S} 是各类原子的平均自旋量子数。

如前所述, Fe₃Si 中有两种 Fe 原子位置,其磁矩 μ_{Fe_1} 和 μ_{Fe_2} 分别为 $2.25 \mu_B$ 和 $1.07 \mu_B$, 这里仍把 Si 视为非磁的。由此可得每原子平均磁矩

$$\bar{\mu} = \frac{8}{16} \mu_{\text{Fe}_1} + \frac{4}{16} \mu_{\text{Fe}_2} + \frac{4}{16} \mu_{\text{Si}} \approx 1.4 \mu_B.$$

对 Fe₃Si 中自旋磁矩仍沿用 g 因子为 2, 可得自旋量子数 $\bar{S} = 0.7 \mu_B$ 。由 Fe₃Si 晶格常数 $a_0 = 5.64 \text{\AA}$, 可得

$$r_0 = \frac{\sqrt{3}}{2} \cdot \frac{a_0}{2} = 2.44 \text{\AA}.$$

这里 Z 取 8, 将 Z , r_0 和 \bar{S} 代入 (2) 式, 可得 $J_{\text{eff}} = 24.0 \text{ meV}$ 。这个数值约为纯 Fe 的有效交换积分值 17 meV 的 1.5 倍。

由 Fe₃Si 的居里温度 $T_c = 823 \text{ K}$ 同样可推出有效交换积分值为 22.3 meV 及劲度系数 $D(0)$ 为 $250 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^2$ 。这些结果基本上是一致的。

这里尚需说明,我们对于 14 K 磁激子的测量,能量仅达 1.0 THz , 即 4 meV , 而先前在室温的磁激子研究,能量高达 40 meV , 而且沿三个主轴方向都作了测量。我们这里仅测了小波矢,低能量磁激子的原因之一,是前面已提到的低温磁激子散射截面变得很小。另外,北京反应堆的中子通量也较低。这样,即使在小波矢、低能区,每一个共振峰已费时达四、五小时之久。但是,当我们的主要兴趣仅仅集中低温自旋波劲度系数的确定,如 Bloch 理论预言那样,仅用小波矢的色散曲线已是足够了。室温下色散曲线的良好二次方关系也从实验上增加了对低温结果的信心。

2. 劲度系数 D , 磁化强度 M 的温度依赖关系

将 14 K 的劲度系数 $D(0)$ 与先前室温以上劲度系数随温度 T 的变化结果联系起来, 就构成了 Fe_3Si 的劲度系数 $D(T)$ 从 0 K 附近直到近居里点 T_c 的温度变化曲线, 即图 3 的实线. 由于目前我们尚不能在低温段改变温度, 故我们不能用这些结果对 $D(T)$ 的 T 依赖关系作进一步定量讨论.

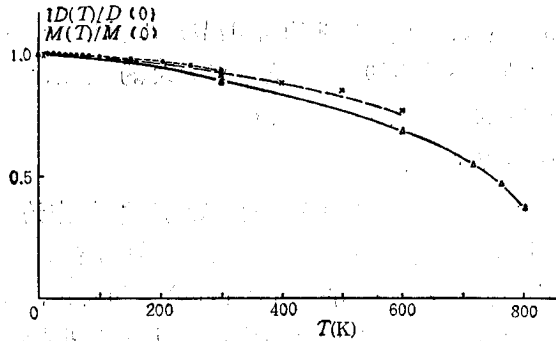


图 3 Fe_3Si 的劲度系数和磁化强度的温度依赖关系

\triangle — \triangle 为 $D(T)/D(0)$; \bullet — \bullet 为磁测量的 $M(T)/M(0)$;
 \times — \times 为由 Bragg 峰所得 $M(T)/M(0)$

图 3 同时给出了磁化强度 M 随温度的变化. 这里需说明, 我们用两种方式研究了 Fe_3Si 的 $M-T$ 关系. 第一种是通常采用的提拉法磁测量, 由中国科学院物理研究所磁测组提供, 温区为 1.5—300 K. 第二种方法则是利用磁性晶体对中子的 Bragg 衍射的方法. 这类 Bragg 峰中 (注意不同于 X 射线的 Bragg 峰) 包含着磁性晶体中“核贡献部分”和“磁贡献部分”. 其中“磁贡献部分”与晶体的磁化强度的平方成正比. 这样, 通过 Bragg 峰中“磁贡献部分”的温度依赖关系也可获得磁化强度的温度依赖关系. 图 3 中的虚线和点线分别表示磁测结果和中子结果. 二者较为接近, 但仍可看出中子结果给出较陡的 $M-T$ 变化关系. 在低温区, 磁化强度随 T 的变化应比劲度系数的变化缓慢. 图 3 所示的结果定性反映这一状况.

下面我们进一步用磁测 $M-T$ 关系来导出自旋波劲度系数.

大家熟知, 低温下磁性晶体的磁化强度 M 随 T 减小遵循

$$M(T)/M(0) = 1 - BT^{\frac{1}{2}} - CT^{\frac{3}{2}} \quad (3)$$

或者

$$\Delta M(T)/M(0) = [M(0) - M(T)]/M(0) = BT^{\frac{1}{2}} + CT^{\frac{3}{2}} \quad (4)$$

(4) 式等号右端首项给出 Bloch 的 $T^{\frac{1}{2}}$ 律. 这一温度依赖关系是由长波自旋波激发造成的. 量 B 可借助于自旋波劲度系数 D 如下表达:

$$B = 0.0587 [g\mu_B/M(0)](k_B/D)^{\frac{1}{2}} \quad (5)$$

这里 g 为 g 因子, μ_B 为 Bohr 磁子, k_B 为 Boltzmann 常数.

这里用 1.5—130 K 磁化强度随 $T^{\frac{1}{2}}$ 近于线性的变化获得

$$B = 0.96 \times 10^{-5} (\text{K}^{-\frac{1}{2}}).$$

从而得到 $D = 200 \pm 15 \text{ meV} \cdot \text{\AA}^2$. 在低温下这个 D 值可视为 0 K 的劲度系数. 为了与中子非弹性散射所获得的自旋波色散曲线导出的劲度系数 $D(0)$ 相区别, 将磁测导出的结果记为 $D_m(0)$.

这两个劲度系数有明显的差别, 更定量些比较, $D_m(0)$ 约为 $D(0)$ 的四分之三.

从物理上讲, $D(0)$ 与 B (以及由 B 导出的 $D_m(0)$) 这两个量涉及到自旋波的两个不同侧面. $D(0)$ 是用中子散射对于长波自旋波性质的直接量度, 即对磁激子这种元激发本身能量与动量关系的直接量度. 而量 B , 因而 $D_m(0)$ 则来自磁化强度类型的测量, 它包含了所有波长自旋波的热平均. 因而, 在原则上二者是可以有差别的.

具体到 Fe_3Si 的 $D(0)$ 与 $D_m(0)$ 的明显差别, 还可能有另外的原因, 例如, 饱和磁化强度随温度的下降, 除主要由于自旋波激发外, 是否含有 Stoner 激发的贡献. 如前所述, 在数据处理中 $M(T) - T^{\frac{1}{2}}$ 近似的呈线性, 但更仔细来看, 它略呈向下弯曲的弓形. 这就可能意味着包含有 Stoner 激发的成分. 然而由于低温段磁化强度的变化很小和测量精度所限, 较难对饱和磁化强度随温度变化作更严格的讨论以定量地确定出 Stoner 激发贡献的大小. 这一问题尚待今后进一步的实验研究.

至于磁化强度随温度变化的两种研究方法, 即通常的磁测方法和用中子弹性散射测 Bragg 峰贡献方法之间的差别, 这里不再作进一步的讨论.

3. 关于磁激子散射截面、中心峰、晶格常数随温度变化的某些结果

尽管这部分仅属于本研究工作的附带产物, 但仍然给出一些有意义的结果.

我们有意识地在其它条件相同时, 比较了室温与 14 K 磁激子对中子的非弹性散射截面. 在所测量的小波矢区域, 均在磁激子产生条件下, 14 K 的散射截面大约下降了十几倍. 这个实验结果与两个温度下玻色粒子热占有数在磁激子产生时造成的散射截面计算值基本相符.

此外, 还从实验上比较了波矢量

$$q = 0.03$$

条件下两个温度的中心峰. 这里所说的中心峰, 是指中心位于 $\hbar\omega = 0$ 处并具有一定能量半宽的中子峰. 它主要是由于自旋涨落与中子发生准弹性散射以及 Bragg 峰的余尾两部分贡献造成的. 室温和 14 K 这两个温度下的 Bragg 峰本身差别很小, 然而中心峰却差别很大. 14 K 的中心峰的半宽变窄而峰中心强度增加近一个量级. 这个结果直接表明, 在低温自旋涨落的能量更集中于零能量附近, 从而表明自旋涨落随时间的过程大大减缓, 而类似于一种准静态过程.

最后, 由于测量不同温度自旋波必须调准不同温度下的晶格常数, 所以附带获得了 Fe_3Si 的晶格常数 $a_0 - T$ 关系. 通常这一关系由不同温度下 X 射线衍射来确定, 鉴于目前国内低温 X 射线衍射的困难, 我们也把这一结果发表于此. 由图 4 可看出, 在室温以上保持较好的线性关系, 低温晶格常数有向上抬的趋势. 这是符合晶格常数温度依赖关系的一般规律的.

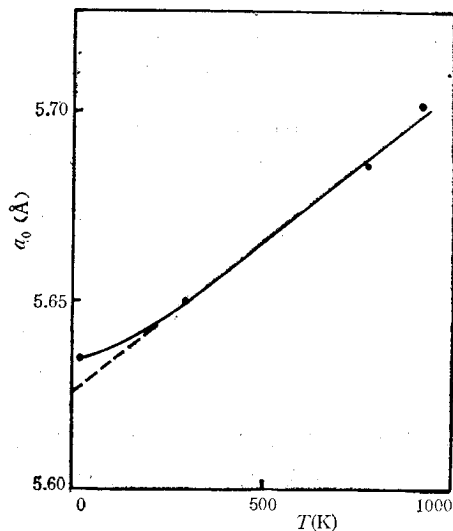


图 4 Fe_3Si 晶格常数的温度依赖关系

四、讨 论

关于 Fe_3Si 中不同 Fe 位的磁矩的另一出处, $\mu_{\text{Fe}_1} = 2.40 \mu_{\text{B}}$, $\mu_{\text{Fe}_2} = 1.20 \mu_{\text{B}}$. 这一结果比本文所引用结果系统地约大 $0.15 \mu_{\text{B}}$. 如用这组结果, 得到的 $J_{\text{eff}} = 22.5 \text{ meV}$, 比前面的 $J_{\text{eff}} = 24.1 \text{ meV}$ 略小一些.

前面 J_{eff} 计算时, 取配位数 $Z = 8$, 因而把 Si 也计入参予交换作用了. 如果排除 Si 原子而把配位数 Z 改为 5.3, 在考虑平均磁矩时也同时排除 Si 原子而得 $\bar{\mu} = 1.86 \mu_{\text{B}}$ 和 $\bar{S} = 0.93$, 这时 J_{eff} 增大为 27.2 meV . (用第二出处得 $J_{\text{eff}} = 25.3 \text{ meV}$.) 这个数值大约是纯 Fe 的 17 meV 的 1.6 倍.

Si 的加入增强了 Fe-Fe 间交换作用的情况, 在非晶 Fe-Si 合金中尤为明显, 甚至(在一定 Si 含量情况下)整个地提高了材料的居里温度^[6].

作者深切感谢法国科学家 B. Hennion 关于三轴谱仪三维分辨率修正程序的教授使用; 李靖元、樊世勇、王金铃等同志的 $M-T$ 测量; 詹文山、沈保根同志的有益讨论; 戴光伟同志提供的低温条件.

参 考 文 献

- [1] G. Iden and W. Pitsch, *Z. Metallkde*, **63**(1972), 253.
- [2] P. v. Blanckenhagen and C. Lin, *Physics of Transition Metals 1980. Institute of Physics Conference Series Number 55*, p. 371.
- [3] P. v. Blanckenhagen and C. Lin *Physica*, **120 B**(1983), 173.
- [4] J. W. Lynn, *Phys. Rev.*, **B11** (1975), 2624.
- [5] B. S. Shastry and D. M. Edwards and A. P. Young, *Physics of Transition Metals 1980. Institute of Physics Conference Series Number 55*, p. 219.
- [6] 沈保根、詹文山、赵见高、陈金昌, *物理学报*, **34**(1985), 1009.

A STUDY OF SPIN WAVE IN Fe_3Si AT LOW TEMPERATURE

TAO FANG YAN QI-WEI SHEN ZHI-GONG
(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

P. v. BLANCKENHAGEN
(*Kernforschungszentrum Karlsruhe, FRG*)

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

LIN QUAN (C. LIN)
(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

The dispersion relation of spin wave in Fe_3Si at 14 K has been measured by inelastic coherent neutron scattering. The spin wave stiffness constant D_0 , which is obtained experimentally from quadratic dispersion of spin wave, equals $270 \text{ meV } \text{\AA}^2$. A calculation of effective exchange integral J_{eff} has been done in the frame of Heisenberg model. From the temperature dependence of magnetization, a spin wave stiffness constant $D_m(0)$ can be derived also. There is an indication of the existence of Stoner excitations from a comparison of D_0 and $D_m(0)$. The temperature dependence of spin wave stiffness constant is also given.