

$\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ ($x=16, 18$) 合金的热导^{*}

吴柏枚 杨东升 盛 松

(中国科学技术大学物理系, 合肥 230026)

徐未名 陈兆甲

(中国科学院低温技术实验中心, 北京 100080)

(1998 年 6 月 22 日收到; 1998 年 10 月 7 日收到修改稿)

测量了 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ ($x=16, 18$) 合金的热导和电导, 温度范围为 77—300 K. 在 SDW 反铁磁转变附近观察到热导率-温度曲线斜率的改变和电导率极大, 这与反铁磁转变过程中能隙的打开有关. 对合金低温热导率结果的分析处理指出, 在声子热导中起作用的主要是声子散射的 U 过程.

PACC: 7215E; 7530F

1 引 言

纯 Cr 是一种非公度的自旋密度波(SDW)反铁磁金属. 当掺入铁磁性杂质 Fe 时, 在合金中会相应出现铁磁相变, 因为铁磁的相互作用远强于反铁磁相互作用. 当铁的含量超过某一值时, 合金中将不会出现反铁磁相. 为了在一个较宽的掺杂范围观察铁磁, 反铁磁变化, 许多研究者在 CrFe 中又掺入了 Mn, 以此来提高反铁磁的耦合强度, 进而深入研究 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ 合金与磁有关的性质, 得到了许多有意义的结果^[1-5]. 当 Fe 的组分 x 在 $9 \leq x \leq 20$ 时, 随着温度的降低, 合金体系中依次出现了反铁磁(AFM), 铁磁(FM)有序的变化, 当降到更低的温度, 体系将重入自旋玻璃态(RSG)^[1]; Cr-Fe-Mn 合金的 Mossbauer 谱, 中子散射及磁测量等研究结果表明在合金中可能存在磁多相共存^[6,7]; 磁阻实验则表明这种磁多相的结构以团簇形式存在^[8]. 尽管如此, $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ 表现出的磁性变化仍然相当丰富和复杂, 对其认识远未清楚, 不论在理论上还是在实验上都有大量工作要做.

合金的热导应同时包含声子热导 k_g 和载流子热导 k_e , 即 $k = k_e + k_g$. 对于具有磁性的材料, 磁矩按一定的规则排列成点阵, 形成自旋波或磁子, 它们之间的协同作用既是一种新的导热机制, 又是电子导热和声子导热的阻力机制^[9]. 磁对热导的贡献一般在较低的温度下可以观察到, 如在 MnF_2 , CoFe ^[10], EuS ^[11] 及巨磁阻 LaCaMnO ^[12] 等材料中, 磁转变附近热导-温度曲线出现规律不同的斜率变化, 这一些变化都与磁子和声子相互作用有关. 因此, 研究磁转变附近热导-温度关系有助探讨磁与声子的作用与机制.

本文测量了 SDW 材料 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ ($x=16, 18$) 合金在 77—300 K 温度范围的热

^{*} 高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 020903)资助的课题.

导和电导,研究了这种体系中磁性变化对热输运性质的影响.

2 样品和实验

最后配比为 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 和 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{18}\text{Mn}_7$ 的样品置于电弧炉中多次熔融,在封闭成真空的石英管中保温 24 h 后,放入水中淬火.X 光衍射分析表明样品直到 4.2 K 均为单相 bcc 结构.

热导测量采用纵向稳态热流法.将样品切割成 $1.5\text{ mm} \times 1.5\text{ mm} \times 10.9\text{ mm}$ 的细杆.一个膜电阻贴在样品的一端作为加热器,样品的另一端与一可变温度的恒温块有很好的热接触.恒温块的温度在 77—300 K 范围内由计算机控制,温度 T 由 Rh-Fe 温度计测定,整个系统处于绝热环境中.在一确定温度 T 时,给加热器加热,在截面积为 A 的杆状样品上,建立起一稳定的热流 $\dot{Q} = U \cdot I$ (其中 U 和 I 分别为加热器的加热电压和加热电流),杆上就会有温差.设相距为 l 的两点之间温差为 ΔT .则样品的热导率为

$$k(T) = \frac{\dot{Q}}{\Delta T} \cdot \frac{l}{A}. \quad (1)$$

实验中,数据的采集由计算机完成.整个装置已用标准不锈钢和铜进行了标定.电阻的测量采用标准的四引线法.

3 结果与讨论

3.1 热导率与温度关系

图 1 给出了 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ ($x = 16, 18$) 合金在 77—300 K 之间热导率的测量结果.室温下,不同铁含量 x 的两个样品的热导率值很相近,约为 $15.3\text{ W/m}\cdot\text{K}$,只是铁含量高的样品的热导率值稍高.在测量温度区间内,热导率 k 和温度 T 的关系为一条光滑变化

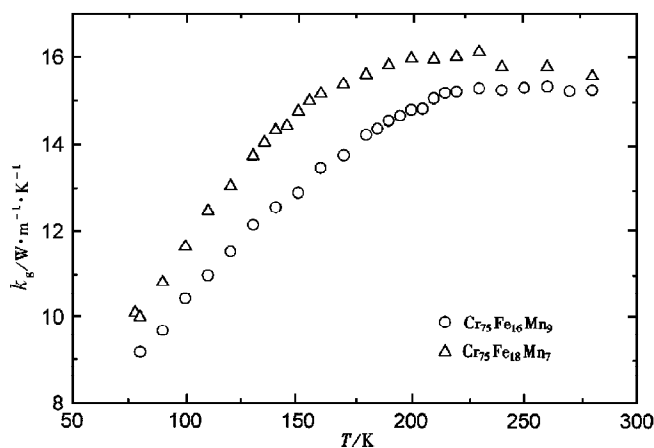


图 1 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 和 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{18}\text{Mn}_7$ 合金的热导率与温度的关系

的曲线. 两个样品在室温附近的热导率近似与温度无关, 但在低温下差别较大, 随着温度的降低两个样品的 k - T 曲线分别在 220 K ($\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$) 和 180 K ($\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{18}\text{Mn}_7$) 附近热导率随温度的下降近似线性的下降. 经多次测量, 重复性很好. 这与磁相图上的 PM-AFM 转变温度相一致^[1], 与 CrFeMn 合金在此温度附近出现 SDW 型反铁磁转变相联系.

为了深入研究 CrFeMn 合金的热导率, 我们测量了它的电导率.

3.2 电导率与温度关系

在相同的温区测量的电导率与温度关系如图 2 所示. 室温下, 两样品的电导率值相差不大, 铁含量高的样品的电导率略高. 随着温度的下降, 在开始阶段两个样品的电导率基本上一致地单调增加, 呈现一般的金属性行为, 但在 210 K (对 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$) 和 150 K (对 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{18}\text{Mn}_7$) 附近分别出现极大 (在 Cr 合金中, 这一极大值对应的温度通常作为 Neel 温度), 随着温度的进一步降低, 两个样品的电导率下降, 电导率极大的位置随着铁含量的增加向低温方向移动.

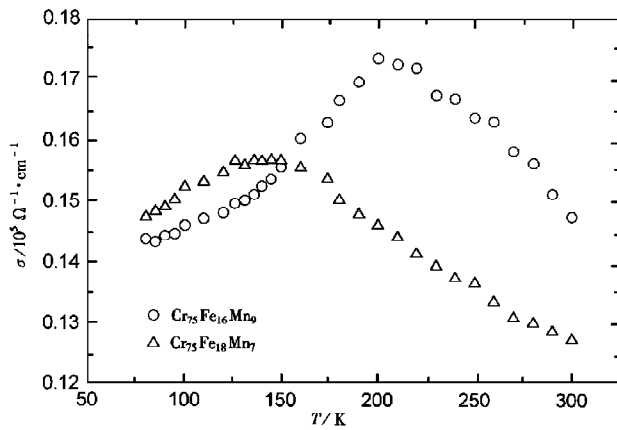


图 2 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 和 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{18}\text{Mn}_7$ 合金的电导率与温度关系

由图 1 和图 2 看到, 热导率和电导率的变化温度非常接近. 在高温端的顺磁相中, 合金的电导率温度关系表现为金属行为. 随着温度的降低, 在 Neel 温度 T_N 附近电导率变差, 这是由于反铁磁能隙 (与 T_N 有关) 逐渐打开, 电子-空穴凝聚^[5]. 因此在 Neel 温度以下, 随着可导电费米面面积的减少, 有效传导电子数减少. 此外, Neel 温度随铁含量增加而降低. 这是由于铁的掺入一方面增加了电子的浓度, 改善了费米面的结构, 另一方面由于减小了能隙序参量, 其强的交换散射破坏了电子-空穴对, 后者的作用大于前者, 导致铁含量增加, Neel 温度降低. 实验中热导率出现下降和电导率下降的温度均随着铁含量的增加向低温方向移动, 反映了合金中的 SDW 型反铁磁转变.

3.3 声子的热导率

合金热导率由声子热导率 k_g 和载流子热导率 k_e 组成, 即 $k = k_e + k_g$. 载流子热导率

k_e 由电导率的测量数据估算, 则 $k - k_e (= k_g)$ 可认为主要是声子(晶格振动)对热导率的贡献. 由所测得的 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ 合金的电导率数据, 利用 Wiedmann-Franz(W-F)定律对合金的电子热导率的贡献部分 k_e 作一简单的估算. 假设电子是弹性散射, 则 $k_e/\sigma = L_0 T$, L_0 为洛伦兹常数. 如果是非弹性散射, 则有效 $L < L_0$, 所以我们利用 W-F 定律得到的 k_e 是载流子对热导率贡献的上限. 计算得到, 室温下 k_e 约占总热导率测量值的 50% 左右. 声子热导率 $k_g = k - k_e$ 的温度关系如图 3 所示. 图 3 中声子对热导率的贡献 k_g 在高温端随着温度的下降而上升, 在 Neel 温度附近没有可观察到的异常. 因此, 可以认为图 1 中热导率-温度曲线斜率的改变主要归因于电子对热导的贡献, 与反铁磁转变过程中能隙的打开而导致有效传导电子数减少有关.

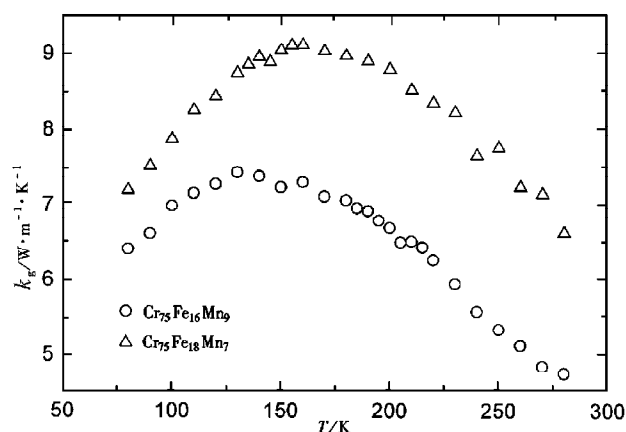


图 3 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 和 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{18}\text{Mn}_7$ 合金声子热导率 $k_g = k - k_e$ 的温度关系
 k_e 是根据 W-F 定律, 由电导率数据估算的电子热导率的贡献部分

在所测温度范围, 声子热导率 k_g 主要依赖于声子的平均自由程 l_g . 影响声子的平均自由程的主要因素有声子-声子散射, 声子-磁子散射, 如果暂不考虑磁对声子的散射的话, 决定声子的平均自由程主要是 U 过程, 当温度下降时由于 U 过程中必须参与的短波声子数减少, 使声子平均自由程增大, 将导致热导率随温度的下降而上升. 图 3 中 k_g 在高温端随着温度的下降而上升可认为主要是声子散射的 U 过程. 但随着温度下降到了 150 K 左右, k_g 随着温度的下降而下降, 明显偏离了 U 过程, 这可能与合金具体的微观结构有关. 如样品边界和晶粒间界等引起的热阻将在较低温度下起主要作用. 也可能与该合金中特殊的磁结构有关, 因为在实验的温区, $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ 合金的磁结构实际上是以有限区域的磁团簇(自旋分别以 AFM 或 FM 耦合)形式存在. 如果将不同的电子自旋趋向的磁团簇的共存类比为晶格中的多相结构, 则图 3 中 k_g 随着温度的下降偏离 U 过程的情况很像不纯或结构不完整样品中的 $k-T$ 的趋势. 关于这方面的讨论有待于更低温度下的热导率实验.

4 结 论

在 77—300 K 温度区间内对 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ ($x = 16, 18$) 合金进行了热导率测量, 在

Neel 转变点附近观察到热导率-温度曲线斜率的改变, 分析指出这与 SDW 反铁磁转变处能隙打开, 有效传导电子数减少有关. Neel 温度附近声子热导中起作用的主要是声子散射的 U 过程. 但合金在较低温度下声子热导明显偏离 U 过程可能与合金具体的微观结构有关或与该合金中特殊的磁结构有关, 真正的原因还有待于更低温度下的热导研究.

- [1] M. Acet, T. Schneider, H. Zahres, W. Stamm, E. F. Wassermann, W. Pepperhoff, *Physica*, **B161**(1989), 63.
- [2] E. Fawcett, S. A. Werner, A. Goldman, G. Shirane, *Physica*, **B156—157**(1989), 715.
- [3] E. Fawcett, S. A. Werner, A. Goldman, G. Shirane, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 558.
- [4] W. M. Xu, W. Steiner, M. Reissner, A. Posinger, M. Acet, W. Pepperhoff, *J. Magn. Magn. Mater.*, **104—107**(1992), 2023.
- [5] E. Fawcett, *Rev. Mod. Phys.*, **66**(1994), 25.
- [6] W. M. Xu, A. Posinger, R. Wagoner, M. Reissner, W. Steiner, G. Wiesinger, *Hyperfine Interactions*, **94**(1994), 1843.
- [7] 徐未名, 科学通报, **41**(1996), 1 [Xu Wei-ming, *Chinese Science Bulletin*, **41**(1996), 1(in Chinese)].
- [8] W. M. Xu, P. Zheng, Z. J. Chen, B. G. Shen, *J. Magn. Magn. Mater.*, **172**(1997), 183.
- [9] R. Berman, *Thermal Conduction in Solids* (Oxford University Press, Oxford, 1976), p. 143.
- [10] Clen A. Slack, *Phys. Rev.*, **122**(1961), 1451.
- [11] G. V. Lecomte, H. V. Lohnseisen, W. Zinn *Phonon Scattering in Condensed Matter*, Editor W. Eisenmenger(Springer Series in Solid-State Sciences, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York Tokyo, 1984), p. 466.
- [12] 盛松、吴柏枚、杨东升、李荐阳、周雅琴、熊光成, 低温物理学报, **19**(1997), 427 [S. Sheng, B. M. Wu, D. S. Yang, J. Y. Li, Y. Q. Zhou, G. C. Xiong, *Chinese Journal of Low Temperature Physics*, **19**(1997), 427(in Chinese)].

THERMAL CONDUCTIVITY OF $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ ($x=16, 18$) ALLOYS *

WU BAI-MEI YANG DONG-SHENG SHENG SONG

(Department of physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026)

XU WEI-MING CHEN ZHAO-JIA

(Cryogenic Laboratory, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

(Received 22 June 1998; revised manuscript received 7 October 1998)

ABSTRACT

The thermal conductivity and the electrical conductivity of $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_x\text{Mn}_{25-x}$ ($x=16, 18$) alloys have been measured over the temperatures range from 77 K to 300 K. The change of slope on thermal conductivity-temperature curve and the maximum on electrical conductivity-temperature curve have been found near the transition temperature of spin density wave type antiferromagnetism, which is related to the opening of the energy gap. Both alloys exhibit a rise in the phonon thermal conductivity with decreasing temperature as being characteristic of umklapp processes.

PACC: 7215E; 7530F

* Project supported by the Doctoral Program Foundation of Institution of Higher Education of China (Grant No. 020903).