

$\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的低频内耗^{*}

吴柏枚 杨东升 盛 松

(中国科学技术大学物理系, 合肥 230026)

刘 卫

(中国科学技术大学内耗与固体缺陷开放研究实验室, 合肥 230026)

徐未名

(中国科学院北京低温技术实验中心, 北京 100080)

(1998 年 6 月 18 日收到; 1999 年 1 月 5 日收到修改稿)

测量了自旋密度波材料 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 的低频内耗, 实验温区为 100—600 K, 测量频率低于 10 Hz. 在高于 Néel 温度的顺磁相中观察到 450 K 附近的内耗峰和相应的总模量的跳变, 反映了合金中各组分的自旋状态在微区内的无序-有序转变. 在 200—300 K 之间观察到一个宽的内耗峰区, 它是由 280 K 的单峰和 270—220 K 延展的宽峰组成, 其相对应的总模量表现为宽范围的少量减小. 此宽峰可能与该合金中自旋密度波反铁磁转变以及磁多相共存有关. 实验表明, 内耗在探测固体中包括电子结构在内的微结构的改变中将是灵敏和有效的.

PACC: 6240; 7530F; 7550E

1 引 言

自旋密度波(SDW)材料 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的磁性, 在从高温向低温的过程中, 经历顺磁到反铁磁, 铁磁以及在更低温度下进入自旋玻璃态. 这一特性引起了人们的普遍兴趣^[1-4]. 磁测量和穆斯堡尔谱实验结果指出该合金不是磁单相的^[5-8], 在 Néel 温度 T_N 以上, 合金虽呈顺磁性, 但其中已存在成某些磁耦合的团簇; 当温度低于 T_N , 合金中形成 SDW 的反铁磁有序, 但仍保持了部分顺磁相. 随着温度的下降, 顺磁的部分逐渐转变成铁磁耦合, 但反铁磁相则一直保留下来. 所以, 到居里温度 T_C 时, 进入反铁磁与铁磁共存的状态. $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的另一个特性在于它是 3d, bcc 结构的因瓦型合金. 在室温下它的热膨胀系数为 $10 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, 是 3d 非磁合金的热膨胀系数 $20 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ 的 1/2, 在低温下具有负的热膨胀系数. 研究指出, 热膨胀系数的异常是与其磁体效应有关联的^[1,9].

内耗是研究各种缺陷以及它们之间的交互作用、相变等的有用工具, 能灵敏而有效地探测固体中微结构的改变^[10,11]. 对 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金这样一个磁多相共存的体系, 内耗的实验研究将为 SDW 的反铁磁有序以及 T_N 以上的顺磁相中磁耦合的存在与形成等问题提供重要信息. 为此, 我们在不同频率下测量了该合金在 100—600 K 温度区间内内耗

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

的变化. 在高于 Néel 温度的顺磁相, 观察到 450 K 附近的内耗峰和总模量的跳变, 反映了样品中各组分的自旋在微区内出现有序. 在 200—300 K 观察到内耗宽峰, 但相应的模量只有少量减小.

2 样品与实验

最后配比为 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 的样品经电弧多次熔融, 在封闭成真空的石英管中保温 24 h 后, 放在水中淬火^[5,8]. 扫描电子显微镜及 X 射线分析表明, 样品成分是均匀的, 在所测的温区内样品为单相 bcc 结构, 样品被切割成 $1.5 \text{ mm} \times 1.5 \text{ mm} \times 10.9 \text{ mm}$ 的条状供测量用.

内耗的测量采用扭摆法. 在多功能内耗仪 (MFIFA-I)^[10] 上测量了 SDW 材料 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 样品在不同温度下和不同频率下的内耗. 测量温区从 100 到 600 K, 测量温升为 1 K/min. 测量频率在 10 Hz 以下. 在 100—300 K 由四引线法测量其电阻.

3 结果与讨论

图 1 和图 2 分别为 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的内耗 Q^{-1} 和模量 M 与温度 T 的关系. 四条曲线分别对应于 3.0, 4.5, 6.7 和 10 Hz 测量频率. 由图 1, 我们看到 450 K 有一个单峰, 峰值温度和相对强度基本不随频率的变化而改变, 只是在 10 Hz 频率下, 相对强度略有减少.

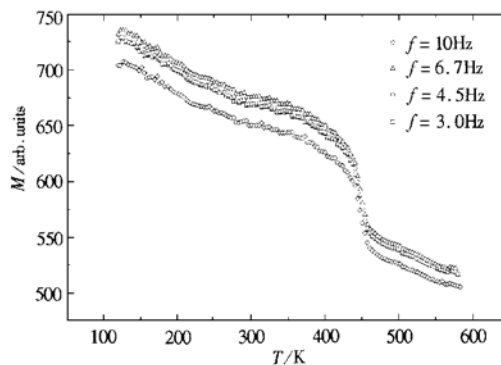
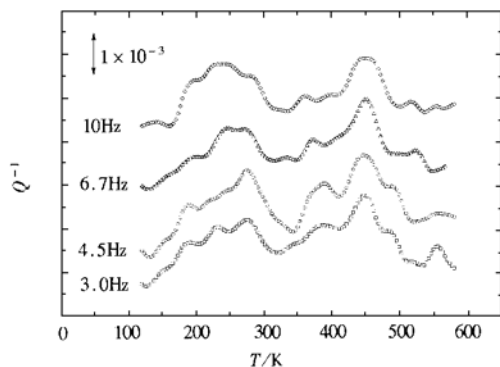


图 1 不同频率下, $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的内耗与温度关系

图 2 不同频率下, $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的模量与温度关系

相应于这一内耗峰, 模量-温度曲线上出现明显的跳变, 如图 2 所示. 在图 1 中, 还观察到样品在 200—300 K 之间存在一个宽的内耗峰, 这一宽峰包含几个小峰. 详细地研究了这一宽峰, 发现在测量频率较低时它由 280 K 的一个尖峰和 270—220 K 区域内的宽峰组成, 见图 3(a) 所示. 从图 1 和图 3(a) 可以看到, 在不同测量频率下各峰值的温度位置基本上保持不变, 但相对强度有所改变. 与 450 K 的内耗峰相比, 对应于这一内耗宽峰, 图 2 中模量随温度的变化没有明显的跳变, 只表现为在宽范围内模量的少量减小. 此外, 图 1 中在 350—370 K 之间还可见一个小峰, 强度相对地弱, 峰的位置随频率的增加向低温方向

移动且强度减弱.

为比较起见, 测量了 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 的电阻. 图 3(b) 中给出了该合金的电阻-温度关系, 温区与图 3(a) 一致. 由图 3(b) 可见, 电阻随温度的变化在 210 K 附近有一极小, 这一极小与反铁磁转变相关, 且极小值的温度与样品中 Fe 含量有关. 合金电阻随温度变化关系与多数公度的 SDW 型合金的电阻变化趋势相类似. 在电阻极小值以下, 随温度降低, 电阻不断增加. Fawcett 等^[2] 指出这是由于反铁磁相变引起的能隙变化的结果.

由于样品在整个实验温区内为单相 bcc 结构, 因而内耗峰的出现不可能是由结构相变引起. 深入研究观察到的内耗峰, 发现它们与该合金的磁状态的变化有联系. 具体说明如下:

3.1 在顺磁相中的内耗峰

内耗和模量的结果指出(图 1, 图 2), 在 450 K 附近出现内耗峰同时对总模量的跳变, 反映合金经历了一个相变. 这个相变显然不是磁的相变, 因为此时样品处在顺磁区域; 这个相变也不是结构上的相变, 因为 X 射线衍射实验表明在所研究的温度区间, 样品中只存在单纯的 bcc 结构. 因此, 我们有理由推断, 这个内耗峰反映了合金中各组分的自旋状态从无序到有序的转变. Cr-Fe 合金的磁性主要由 Fe, Cr 原子在合金中的分布决定, 如 Fe 周围最近邻 Fe 原子多, 则电子自旋间成铁磁耦合, 而在富含 Cr 的区域, 则成反铁磁耦合. 注意到该合金在 T_N 以上已存在某种磁耦合的团簇. 这些团簇在无外场时可表现为超顺磁性^[3,6]. 因此, 在高于 Néel 温度的 450 K 附近的内耗峰应该是磁耦合开始形成的标志. 或者说这是在微区内开始建立磁关联的温度, 即 Fe 或 Cr 原子各自的电子自旋之间的磁耦合开始形成, 只是此时的热运动的作用强于反铁磁及铁磁的交换作用, 因而在宏观上没有表现为磁的转变.

尽管有报道推测在 Néel 温度以上 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金中已存在成某些磁耦合的团簇^[7,8], 但还未见有关其形成的确切的实验判据. 我们通过内耗实验观察到该合金的顺磁相中出现微区内电子自旋有序化的现象, 表明内耗不仅是研究晶格缺陷、结构相变等的有用工具, 而且对 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金这样一个磁多相共存的体系, 内耗也能很灵敏地检测到微区内磁关联的变化. 我们的研究表明, 内耗技术也可以用于探测固体中包括电子结构在内的微结构改变.

电阻、磁弹性效应及磁弛豫等实验表明, 在 Cr 的反铁磁合金体系中存在着自旋涨落,

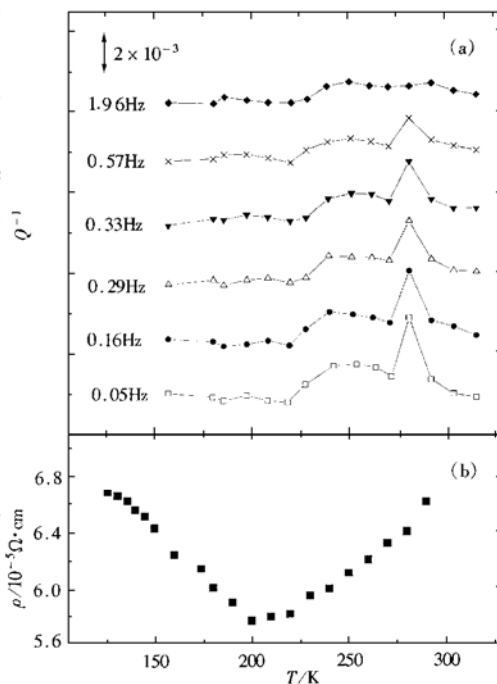


图3 (a) 为低于 3 Hz 频率下, $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的内耗与温度关系; (b) 为 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的电阻与温度关系

甚至在高于 Néel 转变温度 200 K 以上也存在自旋涨落效应^[2]. 因此, 在 350—370 K 附近观察到的内耗峰很可能与 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金中的自旋涨落相联系^[12].

3.2 SDW 反铁磁转变附近的内耗峰

由 280 K 的一个尖峰和 270—220 K 的宽峰组成的在一个较宽温度区域延展的内耗峰区座落在 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的反铁磁转变附近. 与已有的实验结果比较, 280 K 的峰位与穆斯堡尔谱测量中出现部分磁分裂的温度^[3,7], 即出现反铁磁相时的温度相一致. 而 270—220 K 宽峰的低温端延展到了电阻出现极小的温度(图 3(b)), 即 T_N 以下反铁磁能隙打开的温度. 我们初步分析认为, 整个峰区可能联系着合金的 SDW 型反铁磁转变: 280 K 的内耗峰是由于反铁磁相区域开始形成, 但此时在磁化强度测量上未观察到任何反常, 说明反铁磁相不是在整个样品内关联, 而是短程的. 在此温区合金中同时存在反铁磁有序相区域和顺磁相区域^[3]. 随温度下降, 顺磁相将逐渐转变成铁磁有序相^[2]. 于是, 在该磁多相共存的合金中, 反铁磁相出现后, 从微区看, 随温度下降体系内具有一定磁耦合相区域的壁从一类转变成另一类, 即还可能连续出现弱的相变. 这就导致在 270—220 K 温区内延展的内耗宽峰. 当温度降到 210 K 附近时, 反铁磁能隙打开, 巢状费密面凝聚, 费密面面积减少, 致使对磁关联起贡献的有效电子数减少, 电阻随温度下降而上升, 反映在内耗上的减少以至消失.

模量随温度的单调变化在 200—300 K 附近表现为负的贡献(见图 2), 可能与 Cr 合金系统在相过渡处的软化相对应. 根据 Steinemann^[13]对 SDW 的分析, 引入与体积相关的 Néel 温度函数 $T_N(\omega)$. 磁的自由能可写为

$$\Delta F(t) = \Delta\phi(1-t^2)^3,$$

$\Delta\phi = a[T_N(\omega)]^4$ 为基态的依赖于体积的磁自由能(磁激发势), $t = T/T_N$ 为约化温度. 则磁对宏观模量的贡献为

$$\Delta B(t) = -4\Delta\phi \left[\frac{d \ln T_N}{d \omega} \right]^2 (3-t^2).$$

Fawcett 和 Alberts^[14,15]进一步分析指出, 对 Cr 及 Cr 的一些合金、反铁磁化合物甚至铁磁合金, 在趋近有序过渡处, $\Delta B(t) \propto - \left[\frac{d \ln T_N}{d \omega} \right]^2$. 可见, 在过渡处 $\Delta B(t)$ 总是负的, 与我们的实验结果是一致的.

与 450 K 的内耗峰相比, 实验观察到 200—300 K 这一宽温区延展的内耗峰没有对应明显的模量跳变. 因此, 关于此峰区的归因除了上述的可能与合金特殊的磁结构和磁转变有关外, 也可能另有起因, 有待于进一步的实验和理论研究.

4 结 论

测量了 SDW 材料 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金的低频内耗, 温度范围为 100—600 K, 测量频率低于 10 Hz.

(1) 在高于 Néel 温度的顺磁相, 观察到 450 K 附近的内耗峰和对应总模量的跳变. 分

析认为它来自合金中各组分的自旋状态从无序到有序的转变. 此时, Fe 或 Cr 原子各自的电子自旋之间在微区范围内开始建立磁关联.

(2) 在 200—300 K 之间观察到一个宽的内耗峰区, 它是由 280K 的内耗峰和 220—270 K 延展的宽峰组成. 与其相对应的总模量表现为在宽范围内的少量减小. 初步分析认为合金在 280K 开始出现 SDW 反铁磁相, 而 220—270 K 延展的宽峰可能是由于该合金中磁多相共存而在微区连续出现弱的相变引起的.

(3) 我们的实验表明, 内耗不仅是研究缺陷、结构相变等的有用工具, 对 $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ 合金这样一个磁多相共存的体系, 内耗对微区内磁关联的变化也是很灵敏的, 能有效地探测固体中包括电子结构在内的微结构的改变.

- [1] M. Acet, T. Schneider, H. Zahres, W. Stamm, E. F. Wassermann and W. Pepperhoff, *Physica*, **B161**(1989), 63.
- [2] E. Fawcett, H. L. Albert, V. Yu. Galkin and D. R. Noakes, *Rev. Mod. Phys.*, **66**(1994), 25.
- [3] W. M. Xu, A. Posinger, R. Wagoner, M. Reissner, W. Steiner, G. Wiesinger, *Hyperfine Interactions*, **94**(1994), 1843.
- [4] Y. Tsuchiya, H. Nakamura, S. Murayama, K. Hoshi, Y. Shimojo, Y. Morii and Y. Hamaguchi, *Physica*, **B237-238**(1997), 446.
- [5] W. M. Xu, W. Steiner, M. Reissner, A. Posinger, M. Acet and W. Pepperhoff, *J. Magn. Magn. Mater.*, **104-107**(1992), 2023.
- [6] 徐未名, 低温物理学报, **18**(1996), 294 [Xu Weiming, *Chinese Journal of Low Temperature Physics*, **18**(1996), 294 (in Chinese)].
- [7] 徐未名, 科学通报, **41**(1996), 1 [Xu Weiming, *Chinese Science Bulletin*, **41**(1996), 1 (in Chinese)].
- [8] W. M. Xu, P. Zheng, Z. J. Chen and B. G. Shen *J. Magn. Magn. Mater.*, **172**(1997), 183.
- [9] H. L. Albert and A. J. Lourens, *J. Phys.: Condense Matter*, **4**(1992), 3835.
- [10] Wen Yiting, In Internal Friction and Ultrasonic Attenuation, edit. . Ke T. S. & Zhang L. D. (Atomic Energy Press, Beijing, 1989), p. 129 (in Chinese).
- [11] Liu Wei, Y. T. Wen and Y. T. Qian, *Chinese Science Bulletin*, **39**(1994), 908.
- [12] Moriya, Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism (Springer Series in Solid State Sciences, 56), (Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1985), p. 194.
- [13] S. G. Steinemann, *J. Magn. Magn. Mater.*, **7**(1978), 84.
- [14] E. Fawcett and H. L. Alberts, *J. Phys.: Condense Matter*, **2**(1990), 6251.
- [15] E. Fawcett and H. L. Alberts, *J. Phys.: Condense Matter*, **4**(1992), 613.

LOW-FREQUENCY INTERNAL FRICTION IN $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ ^{*}

WU BAI-MEI YANG DONG-SHENG SHENG SONG

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

LIU WEI

(*Laboratory of Internal Friction and Defects in Solids, University of Science and Technology of China, Hefei 230026*)

XU WEI-MING

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

(Received 18 June 1998; revised manuscript received 5 January 1999)

ABSTRACT

The low-frequency internal friction in $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{16}\text{Mn}_9$ alloy has been measured in temperature range of 100–600 K and at frequencies lower than 10 Hz. It is found that an internal friction peak at 450 K and corresponding jump of modules exist in the paramagnetic phase. This indicates there is a disorder-order transition on coupling states between individual spins for the Cr and Fe components. There is a broad internal friction peak in the temperature range from 200 to 300 K, which consists of a peak at 280 K and the extended broad peak at 220–270 K. We suggest that this effect is the reflection of the spin density wave antiferromagnetic transition and the coexistence of different magnetic phases in the alloy. Our results reflect the fact that internal friction method would be a sensitive and effective probe for investigating the change of microstructure including electric structure.

PACC: 6240; 7530F; 7550E

^{*} Project supported by the Doctoral Program Foundation of Institution of High Education of China(Grant No. 020903).