

# MgB<sub>2</sub> 混合态热导率的反常增强 \*

杨东升 吴柏枚 李 波 郑卫华 李世燕 陈仙辉 曹烈兆

(中国科学技术大学结构分析研究开放实验室, 物理系, 合肥 230026)

(2002 年 11 月 27 日收到 2002 年 12 月 22 日收到修改稿)

测量了 MgB<sub>2</sub> 多晶样品的混合态热导率, 磁场强度为 0—7 T, 温度范围为 5—45 K. 实验结果显示 MgB<sub>2</sub> 热导率在低场下迅速上升, 高场下趋于饱和, 这与 MgB<sub>2</sub> 的二能隙电子结构有关. 对实验结果的分析指出, 低温强场下 MgB<sub>2</sub> 多晶样品热导率的显著增强无法完全用电子热导来解释, 并对此进行了讨论.

关键词: MgB<sub>2</sub>, 热导率, 混合态

PACC: 7215E, 7430F

## 1. 引 言

自从在 MgB<sub>2</sub> 中发现接近 40 K 的高  $T_c$  以来<sup>[1]</sup>, 人们对该材料的物理性质进行了大量的实验和理论研究<sup>[2-4]</sup>. 热导是材料最基本的输运性质之一, 反映存在温度梯度情况下的能量输运过程, 与材料的结构和载流子运动状态有关. 特别是对于超导材料, 低温强场下的热导率测量能够对材料中的准粒子运动状态和能隙对称性进行有效的探测<sup>[5-7]</sup>. 最近, 人们对于 MgB<sub>2</sub> 的热导率已经进行了一些测量<sup>[8-15]</sup>, 这些实验结果也引起了理论研究者的极大兴趣<sup>[16, 17]</sup>. 但是, MgB<sub>2</sub> 在混合态下的热导率实验结果还很少, 而在混合态下可能会出现一些反常的能量输运现象<sup>[18, 19]</sup>.

随着样品制备技术的发展, 现在已经可以获得品质较好的样品用于热导实验测量. 相对于单晶样品而言, 多晶样品中的杂质、缺陷较多, 大量的晶粒取向杂乱无章, 晶界使得电荷和能量在输运过程中受到的散射增加. 不过对于 MgB<sub>2</sub> 而言, 电子相干长度大于晶粒之间的连接长度, 因此不像在铜氧化物高温超导体中那样存在较严重的弱连接问题. 在电荷输运过程和能量输运过程中存在简单温度关系的晶界散射问题, 但晶界散射的影响不会随磁场变化. 对于声子热导 Schneider 等的实验结果显示, 至少在 7 K 以下的温度, 边界散射才能够成为影响声子热

导的主要散射机制<sup>[10]</sup>. Mazin 等的理论研究表明, 对于不同品质样品的实验研究, 可以得到 MgB<sub>2</sub> 的两个能带上不同的杂质散射率, 为二能隙模型提供了必要的实验证据<sup>[20]</sup>. 现有的一些 MgB<sub>2</sub> 热导率实验结果也证实了这一点<sup>[14, 15]</sup>.

我们对 MgB<sub>2</sub> 多晶样品的混合态热导率进行了实验测量, 实验中使用的磁场为 0—7 T, 实验温区为 5—45 K. 我们发现, MgB<sub>2</sub> 的混合态热导率随着磁场的增强而增强, 在低场下迅速上升, 高场下趋于饱和, 这一现象与 MgB<sub>2</sub> 的二能隙电子结构有关. 从实验结果来看, MgB<sub>2</sub> 混合态热导率的显著增强不可能完全来自于电子热导的贡献, 因此可能存在其它的能量输运通道, 文中对此进行了讨论.

## 2. 样品与实验

实验中使用的 MgB<sub>2</sub> 多晶样品使用固态反应法制备, 样品经过重复烧结, 致密度较高, XRD 分析结果显示没有杂相存在<sup>[14]</sup>. 用来测量热导率的样品被切割成杆状, 尺寸为  $2 \times 2.5 \times 1 \text{ mm}^3$ . 热导率测量采用稳态热流法, 使用镍铬-康铜差分热偶测量样品上的温差, 热偶的温差电势使用 Keithley 2182 纳伏表来测量<sup>[21]</sup>. 同时采用常规的四引线法测量了样品在零场和磁场下的电导率. 外加磁场由 Oxford Instruments 公司的超导磁体系统提供, 磁场方向平行于热流方向, 最高磁场可以达到 14 T. 强磁场下的温度测

\* 国家自然科学基金(批准号 10174070) 和国家重点基础研究专项基金(批准号 NKBRSF-G19990646) 资助的课题.

量使用 LakeShore 公司的渗碳玻璃电阻温度计.

### 3. 结果和讨论

为了理解电荷载流子在磁场下的能量输运,首先有必要了解磁场下的电荷输运情况.图 1 给出了  $MgB_2$  多晶样品在不同磁场下的电阻率-温度曲线,

磁场大小分别为 0, 1, 4, 7, 10 和 14 T. 从图 1 可以看到, 随着磁场的增加,  $MgB_2$  正常态电阻率几乎不发生变化. 在 40 K 以下的温度, 磁场令样品保持在正常态时, 电阻率也与高温下的正常态值相同, 因此可以认为低温下样品的电阻率主要受到杂质散射的影响. 图 1 中的插图为根据电阻率-温度曲线得到的上临界场温度关系, 和已有的实验结果一致<sup>[22]</sup>.

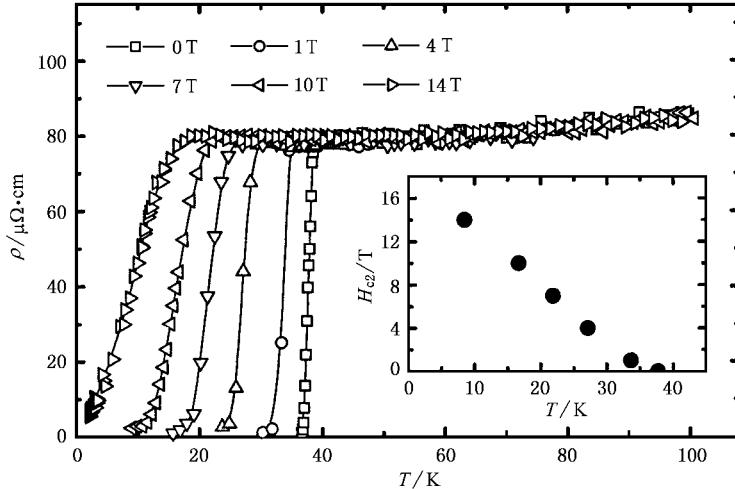


图 1  $MgB_2$  多晶样品在不同磁场下的电阻率 插图为根据电阻率实验数据得到的上临界场  $H_{c2}$

图 2 给出了  $MgB_2$  多晶样品在不同磁场下的热导率. 从图 2 可以看出, 1 T 磁场下的热导曲线已经明显偏离零场热导曲线, 但热导率随磁场变化的幅度并不是与磁场大小成正比. 在较高的磁场下, 热导率变化幅度相对较小. 图 2 中的插图给出了温度为

5 K 时测量的热导率随磁场增加和减小而发生的变化, 从中可以更清楚地看到在较小的磁场下, 热导率随磁场增大而迅速上升, 当磁场继续增加时, 热导率上升速率放慢, 逐渐趋于饱和.

II 类超导体在混合态下的热导率非常依赖于准

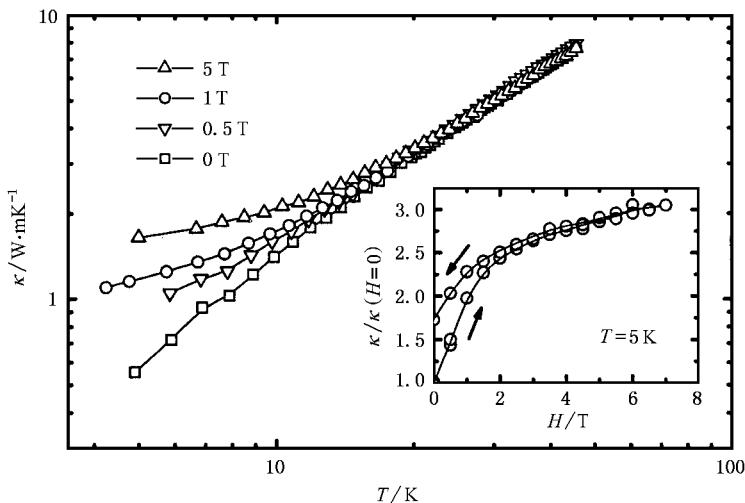


图 2  $MgB_2$  多晶样品在不同磁场下的热导率 插图为热导率在磁场增加和减小时的变化情况

粒子平均自由程  $l$  和相干长度  $\xi_0$  的比率,  $l$  和  $\xi_0$  的比率反映了不同电子波函数之间的干扰程度,因此导致材料的混合态热导行为有很大的不同。通过我们的电输运性质测量,可以得到样品的  $l/\xi_0 \ll 1$ , 处于较脏的范围。处于脏极限下的Ⅱ类超导体,低温下的混合态热导具有以下的基本特征:当磁场略高于  $H_{c1}$  时,准粒子仅仅出现在磁通涡旋核心中,被束缚在磁通涡旋核心中的准粒子对电子比热有贡献,对热导的贡献很小。随着磁场的增强,磁通涡旋相互靠近,准粒子开始能够在邻近的磁通涡旋之间隧穿,由BCS基态激发出来的处于磁通涡旋核心之外的非定域化准粒子数目增加,准粒子热导增强。当磁场接近  $H_{c2}$  时,非定域化准粒子数目已经相当多,准粒子热导随磁场增加呈线性增长。对于脏Ⅱ类超导体,高场下还存在无能隙行为,Caroli和Cyrot的理论研究指出,在  $H_{c2}$  处热导曲线的斜率和磁化强度曲线斜率之比是温度的一般函数<sup>[23]</sup>。对于二能带过渡金属超导体的研究结果表明,总的准粒子热导是两个能带上的准粒子对热导贡献的叠加,因此以上关系仍然保持<sup>[24]</sup>。

$MgB_2$  具有很小的下临界场  $H_{c1} < 0.05$  T。在略高于  $H_{c1}$  的磁场下,少量束缚在磁通涡旋核心中的准粒子对热导没有多大的贡献,主要是起对声子的散射作用。而声子热导由于受到的准粒子散射增强而下降,可能会导致整体热导的迅速下降<sup>[12, 13]</sup>,但在这里并没有见到这一现象。这主要是因为在测量过程中,磁场方向平行于热流方向。当磁场方向垂直于热流方向时,声子受到的准粒子散射最强,磁场方向平行于热流方向时,声子受到的散射最小<sup>[25]</sup>。随着磁场的进一步提高,准粒子数目增多,声子热导逐渐下降到正常态值,同时准粒子热导也在增强,整体热导上没有出现显著下降的现象。在高场下,  $MgB_2$  的热导率随磁场的变化规律接近线性,曲线的斜率较小,反映出样品具有较高的杂质散射率。

$MgB_2$  在低场下的混合态热导与传统的脏极限Ⅱ类超导体有着很大的不同,热导率在磁场作用下上升的速度远远高于常规超导体。低场下混合态热导率的快速上升要求有大量的非定域化准粒子出现。类似于能隙中带有节点的超导体,磁场造成的准粒子能谱发生多普勒频移,节点附近的准粒子在低场下就能够迅速非定域化,造成热导率随磁场增加几乎是线性增加。同样类似的还有高度各向异性能隙超导体<sup>[26]</sup>。另外,在低温高场下,准粒子朗道能级

能够很好地量子化,当磁场较低时,费米面上部分区域也会出现无能隙的准粒子,也可以导致材料的混合态热导在低场下迅速增加<sup>[27]</sup>。但是,  $MgB_2$  的混合态热导在低场下增加的速率比带有节点或高度各向异性能隙的超导体还要快,要求出现的非定域化准粒子数目更多。对  $MgB_2$  混合态比热的实验和理论研究表明,由于  $MgB_2$  中存在双能隙结构<sup>[28]</sup>,与小能隙相关的磁通涡旋核心的半径大,态密度分布相对松散。在很小的磁场下,与小能隙相关的磁通涡旋核心外的低能态就容易发生交叠<sup>[29, 30]</sup>。而热导率能够反映出相关的准粒子在很小的磁场下非定域化,这些准粒子遍布整个与较小能隙相关的费米面。因此  $MgB_2$  的混合态热导率在低场下的迅速增加是  $MgB_2$  的二能隙电子结构的一个反映。

从图2的插图中可以看出,  $MgB_2$  混合态热导的另一个反常之处在于高场下的热导率比零场热导率高出300%以上。按照传统的观点,在磁场增加的过程中,声子热导受到更多的准粒子散射,因此是下降的。整体热导率的升高来源于电子热导。在40 K以下的温度,可以认为样品的电阻率主要受到杂质散射的影响,正常态电阻率保持不变。根据 Wiedemann-Franz 定律,可以给出样品正常态电子热导的上限  $\kappa^n = L_0 T / \rho_0$ , 其中  $L_0 = 2.45 \times 10^{-8} \text{ W}\Omega \cdot \text{K}^{-2}$ 。由此可以得到的样品电子热导上限小于零场整体热导率。因此在磁场的作用下,即便是电子热导增加到正常态值,也不可能导致整体热导发生这么大的变化。在  $MgB_2$  单晶样品的混合态热导研究就已经观察到这种反常热导增强,但是因为单晶样品中准粒子热导很大,随磁场的相对变化也很大,使得这个问题相对被掩盖了。结果发现低温下的正常态电子热导温度关系略为偏离 Wiedemann-Franz 定律,可能和正常态电子系统的不稳定性有关<sup>[13]</sup>。但是理论研究结果指出,正常态电子热导温度关系对 Wiedemann-Franz 定律的偏离难以解释<sup>[16]</sup>。而从这里多晶样品混合态热导实验结果来看,这个问题则显得更为突出,不可能通过电子热导温度关系对 Wiedemann-Franz 定律的略微偏离来解释。

热导率在磁场下发生剧变,一般都与材料中的自旋有关。例如在准二维海森伯格反铁磁材料  $K_2V_3O_8$  的热导实验中,发现磁场导致热导明显增强,表明在磁场作用下出现了具有强导热能力的长波磁子<sup>[31]</sup>。Hill 等在铜氧化物超导体( $Pr, Ce$ )<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub>中就发现了电子热导偏离费米液体理论的现象,可

能与自旋-电荷分离有关<sup>[32]</sup>. Lorenz 等更是通过热导实验证实了准一维有机 Bechgaard 盐中存在自旋-电荷分离现象,显示出在非费米液体传导系统中,自旋热导可能远远大于电荷热导<sup>[33]</sup>. 实验结果还发现,具有准二维结构的铜氧化物超导体  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  的低温声子热导在超导态下受到强烈抑制,可能和材料中存在的自旋-电荷条纹相的流动性有关<sup>[34,35]</sup>. 在  $\text{MgB}_2$  的传导电子自旋共振实验中发现自旋具有相当长的平均自由程,并且在很低的磁场下就大量出现,有可能参与到能量输运的过程中<sup>[36]</sup>.

## 4. 结 论

对  $\text{MgB}_2$  多晶样品的混合态热导率进行了测量,实验结果表明,由于  $\text{MgB}_2$  中存在双能隙电子结构,在很小的磁场下,与小能隙相关的非局域化准粒子即大量产生,使得热导得以迅速上升.但是在低温强场下  $\text{MgB}_2$  热导率的显著增强不可能完全来自于电子的热导贡献,可能与  $\text{MgB}_2$  中的自旋能量输运有关.

- 
- [1] Nagamatsu J, Nakagawa N, Muranaka T *et al* 2001 *Nature* **410** 63
  - [2] Buzea C, Yamashita T 2001 *Supercond. Sci. Tech.* **14** R115
  - [3] Choi H J, Roundy D, Sun H *et al* 2002 *Nature* **418** 758
  - [4] Li S C *et al* 2001 *Chin. Phys.* **10** 338
  - [5] Wu B M, Yang D S *et al* 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 267 (in Chinese) [吴柏枚、杨东升等 2000 物理学报 **49** 267]
  - [6] Krishana K, Ong N P, Li Q *et al* 1997 *Science* **277** 83
  - [7] Izawa K *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 2653
  - [8] Muranaka T, Akimitsu J, Sera M 2001 *Phys. Rev. B* **64** 020505
  - [9] Bauer E *et al* 2001 *J. Phys.: Cond. Mat.* **13** L487
  - [10] Schneider M *et al* 2001 *Physica C* **363** 6
  - [11] Putti M *et al* 2001 cond-mat 0109174
  - [12] Sologubenko A V, Jun J, Kazakov S M *et al* 2002 *Phys. Rev. B* **65** 180505
  - [13] Sologubenko A V, Jun J, Kazakov S M *et al* 2002 *Phys. Rev. B* **66** 014505
  - [14] Yang D S, Wu B M *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 683 (in Chinese) [杨东升、吴柏枚等 2003 物理学报 **52** 683]
  - [15] Putti M *et al* 2002 cond-mat 0210175
  - [16] Tewordt L, Fay D 2002 cond-mat 0204468
  - [17] Kusunose H, Rice T M, Sigrist M 2002 cond-mat 0208113
  - [18] Zhao Z W *et al* 2001 *Chin. Phys.* **10** 340
  - [19] Li H L *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2044 (in Chinese) [李慧玲等 2001 物理学报 **50** 2044]
  - [20] Mazin I I *et al* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 107002
  - [21] Yang D S, Wu B M 1999 *Chin. J. Low Temp. Phys.* **21** 156 (in Chinese) [杨东升、吴柏枚 1999 低温物理学报 **21** 156]
  - [22] Jin H, Wen H H *et al* 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 823
  - [23] Caroli C, Cyrot M 1965 *Phys. Kondens. Mater.* **4** 285
  - [24] Tang I M 1972 *Phys. Rev. B* **6** 172
  - [25] Vinen W F, Forgan E M, Gough C E *et al* 1971 *Physica A* **55** 94
  - [26] Boaknin E, Hill R W, Proust C *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 237001
  - [27] Dukan S, Powell T P, Tesanovic Z 2002 *Phys. Rev. B* **66** 014507
  - [28] Zhang J *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 342 (in Chinese) [张杰等 2002 物理学报 **51** 342]
  - [29] Bouquet F, Fisher R A, Phillips N E *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 047001
  - [30] Nakai N, Ichioka M, Machida K 2002 *J. Phys. Soc. Jpn.* **71** 23
  - [31] Sales B C, Lumsden M D, Nagler S E *et al* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 095901
  - [32] Hill R W, Proust C, Taillefer L *et al* 2001 *Nature* **414** 711
  - [33] Lorenz T *et al* 2002 *Nature* **418** 614
  - [34] Nakamura Y *et al* 1991 *Physica C* **185** 1409
  - [35] Baberski O *et al* 1998 *Europhys. Lett.* **44** 335
  - [36] Simon F *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 047002

# Anomalous thermal conductivity enhancement in the mixed state of $\text{MgB}_2$ <sup>\*</sup>

Yang Dong-Sheng Wu Bai-Mei Li Bo Zheng Wei-Hua Li Shi-Yan Chen Xian-Hui Cao Lie-Zhao

( Structural Research Laboratory , Department of Physics , University of Science and Technology of China , Hefei 230026 , China )

( Received 27 November 2002 ; revised manuscript received 22 December 2002 )

## Abstract

The thermal conductivity of  $\text{MgB}_2$  polycrystalline sample in the mixed state has been investigated as a function of magnetic field ( 0 – 7 T ) and temperature ( 5 – 45 K ). The thermal conductivity increased rapidly in low magnetic fields , and became saturation in higher fields . This behaviour correlates with the two-gap electronic structure of  $\text{MgB}_2$  . Analysis indicates that the remarkable enhancement of thermal conductivity of  $\text{MgB}_2$  polycrystalline sample in the mixed state cannot be completely attributed to the electronic contribution .

**Keywords :**  $\text{MgB}_2$  , thermal conductivity , mixed state

**PACC :** 7215E , 7430F

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10174070 ) and the Special Foundation for State Major Basic Research Program of China ( Grant No. NKBRSF-G19990646 ).