

非晶合金中的低温电阻率极小行为研究*

黄 智¹⁾²⁾ 白海洋²⁾ 景秀年²⁾ 王志新²⁾ 王万录¹⁾

¹⁾ 重庆大学应用物理系, 重庆 400044)

²⁾ 中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(2003 年 6 月 4 日收到, 2004 年 1 月 18 日收到修改稿)

研究了非磁非晶合金 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ 和铁磁非晶合金 $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$ 的低温电阻, 用不同的模型对电阻温度曲线进行拟合. 对两个样品中出现的极小值行为进行分析, 探讨了无序结构和磁性状态对极小值行为的影响.

关键词: 非晶合金, 电阻, 极小值

PACC: 6140D, 7215C

1. 引 言

非晶合金电子输运性质的研究, 是一个重要而又未获解决的基本物理课题^[1-3]. 与晶态材料相比, 非晶态金属合金不具有长程原子有序, 但在多数的非晶态金属合金中又确实存在最近邻或局域的原子有序, 导致了非晶合金独特的机械性能、磁学性能^[4,5]和热学性能^[6,7]. 同时, 非晶合金中电子的平均自由程很小, 因此也具有与晶态材料不同的输运性质, 表现在电阻率很大, 电阻温度系数很小. 此外由于几乎所有的非晶合金材料都至少含有一种过渡金属或稀土金属元素作为其主要成分, 使得其费米能级上存在着 d 带或 f 带电子, 增加了电子输运性质研究的复杂性. 近年来, 很多研究者在非晶合金的低温电阻行为中观察到极小值的存在. 这些极小值不仅出现在稀磁合金中, 在非磁和铁磁样品中也同样出现^[8]. 这些极小值有许多新的特点, 例如许多极小值出现在室温附近; 另外, 在铁磁非晶合金中也发现了极小值, 但是其低温电阻率行为在较强的磁场下并没有受到影响^[9,10]. 针对各种不同的体系, 人们提出了不同的机理来解释, 有人倾向于用结构无序的模型理解, 如双能级模型^[11]、电子-电子相互作用^[12]; 有人则归结于磁性起因, 如近藤效应^[13], 但是到目前为止并没有统一的认识. 本文测量了两个非晶样品的低温电阻率行为, 一个样品为非磁的 Cu_{60}

$\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$, 另一个为铁磁样品 $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$, 在两个样品中电阻率都出现了极小值, 我们对于这两种样品进行了分析比较, 探讨了在磁性和非磁性非晶合金系统中, 无序和磁性对于极小值出现的影响.

2. 试验方法

两个样品都是通过铜模吸铸的方法制备的, 所得为直径为 2mm 的棒状样品. 用 MAC M03XHF 衍射仪(Cu 靶 $K\alpha$ 辐射)对样品做 x 射线衍射分析确定其为非晶结构. 在棒状样品上切取长 10mm 的一段用来做低温电阻测量, 并将其磨制成长条, 横断面为 $1.0\text{mm} \times 0.5\text{mm}$. 电阻测量采用四引线法, 为了防止样品与衬底因膨胀系数的不同导致样品在低温下开裂, 我们在样品和衬底(蓝宝石片)间涂了一层脂膜. 在综合物理性质测量系统 PPMS(Physical Property Measurement System, Quantum Design, USA)上测定电阻曲线, 温度范围为 1.9K 到 300K.

3. 结果与分析

图 1 所示为 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ 在 1.9—300K 之间的归一化电阻-温度曲线. 在整个温度区间呈负的电阻温度系数. 由插图可以清晰的看到在大约 15K 位置出现一个浅的极小值, 从 1.9K 到 15K 之间电阻下

* 国家自然科学基金(批准号: 50225101, 50171075, 50031010)资助的课题.

降非常快,与高于 15K 的电阻-温度关系有着不同的依赖关系.同时可以看出在接近室温端,电阻与温度有着负的线性关系.

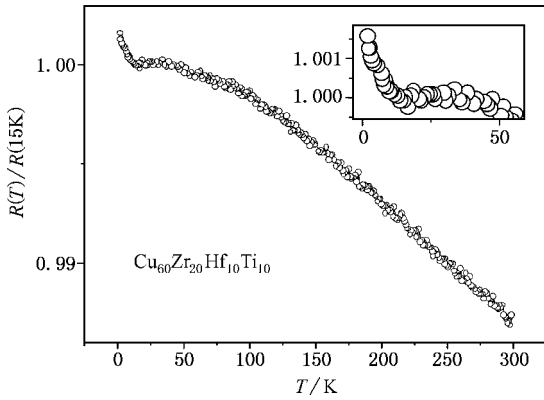


图 1 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ 的电阻-温度曲线,插图显示了在 15K 出现了一浅极小值

图 2 所示的为 $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$ 在 1.9—300K 之间的电阻-温度曲线,电阻已经归一化.图中插图可以明显看到在接近室温(266K)出现一极小值,与 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ 不同的是,此极小值改变了样品的电阻温度系数,在该点到室温都显示出正的电阻温度系数.

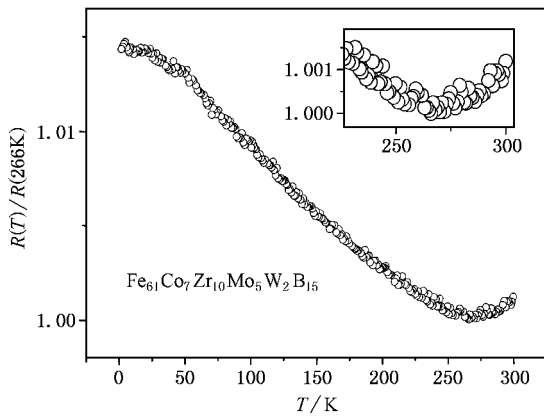


图 2 $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$ 的电阻-温度曲线,插图显示出室温附近有一极小值

对于 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ 样品在低温下出现的浅极小值,如图 3 所示,从 1.9K 到 15K,可以分别用 $-\ln T$ 和 $-\sqrt{T}$ 拟合,方差检验可知 $-\ln T$ 可以更好地符合数据.图 4 为 $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$ 样品在 120—266K 温度区间的 $R/R_{\min}-\ln T$ 曲线,可以看出有很好的线性关系,表示在该温度范围内电阻随温度的变化满足 $-\ln T$ 关系.

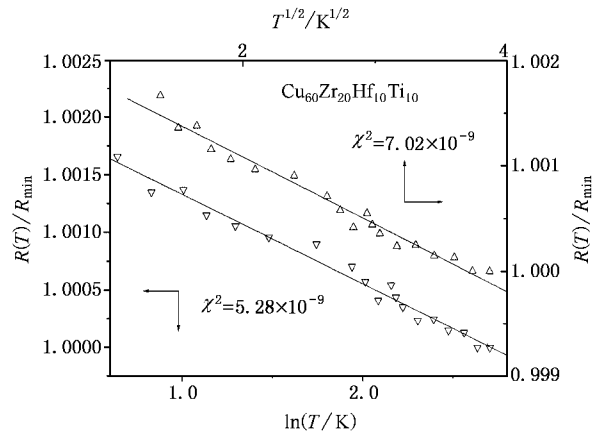


图 3 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ 在低于 15K 温区的拟合曲线,分别用 $-\ln T$ 和 $-\sqrt{T}$ 拟合,箭头指向对应的坐标轴

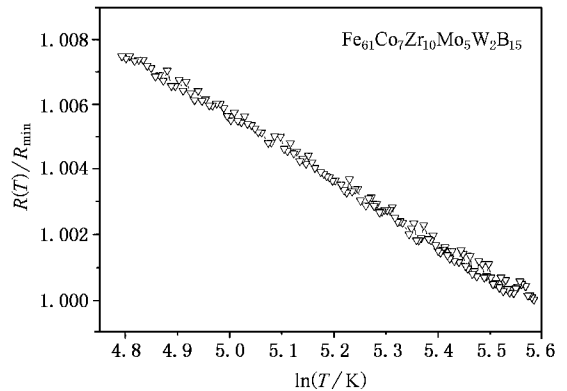


图 4 $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$ 在 120—266K 间的 $R/R_{\min}-\ln T$ 曲线, R_{\min} 为电阻的最小值

我们对两个样品的电阻-温度曲线分别进行了拟合,其结果如下.

对于 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$: 1.9—15K, $R(T)/R_{\min} = R_{01} - A \ln T$; 15—156K, $R(T)/R_{\min} = R_{02} - BT^2$; 156—300K, $R(T)/R_{\min} = R_{03} - CT$.

对于 $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$: 1.9—80K, $R(T)/R_{\min} = R_{01}' - A'T^2$; 120—266K, $R(T)/R_{\min} = R_{02}' - B'\ln T$; 266—300K, $R(T)/R_{\min} = R_{03}' + C'T^2$.

对于铁磁样品,80—120K 之间的曲线可以看作过渡区,可以用 $-\ln T$ 和 $-T^2$ 项共同拟合.表 1 给出了两个样品电阻测量和拟合的有关参数.

在分析两个样品中所出现极小之前,首先考虑到它们的共同之处:都具有负的电阻温度系数.按照由液态金属电阻率推出的齐曼理论^[14-16],在非晶合金中,电阻温度系数可以由下式给出:

$$\alpha = (1/\rho) \partial \rho / \partial T \approx [1 - S(2K_F)] / S(2K_F) \cdot \partial W(T) / \partial T. \quad (1)$$

表 1 样品电阻测量和拟合的有关参数

	$\rho_{300K}(\mu\Omega \cdot \text{cm})$	T_{\min}/K	R_{01}	R_{02}	R_{03}	$A \times 10^{-4}(\ln K)^{-1}$	$B \times 10^{-7}/\text{K}^{-2}$	$C \times 10^{-5}/\text{K}^{-1}$
$\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$	219	15	1.002	1.0002	1.004	7.75	1.94	5.98
$\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$	144	266	R_{01}'	R_{02}'	R_{03}'	$A'/10^{-7}\text{K}^{-2}$	$B'/10^{-3}(\ln K)^{-1}$	$C'/10^{-8}\text{K}^{-2}$
			1.014	1.054	0.997	6.12	9.84	4.71

这里 K_F 是费米波矢, $S(2K_F)$ 对应于 $K = 2K_F$ 处的结构因子, $W(T)$ 是对应的德拜-瓦勒因子. 在德拜近似下, $W(T)$ 的温度依赖关系由下式给出:

$$W(T) = W(0) + 4W(0) \left(\frac{1}{6} \right) \pi^2 (T/\theta_D)^2, T \ll \theta_D, \quad (2)$$

$$W(T) = W(0) + 4W(0) \left(T/\theta_D \right), T \gg \theta_D, \quad (3)$$

其中 $W(0) = 3\hbar^2 k^2 / 8Mk_B \theta_D$, M 为原子质量, k 为波矢, θ_D 为德拜温度.

由上述可以看出, 推广的齐曼理论可以预测出在远大于德拜温度的区间里, 电阻随温度的变化是线性的, 在低于德拜温度下, 电阻随温度的变化产生 T^2 项, 电阻温度系数的正负则取决于 $S(2K_F)$ 的值. 对于 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ 样品, 从 15K 到 300K, 对于 $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$ 样品, 为 1.9K 到 80K, 都可以用齐曼理论进行拟合. 由于本文主要目的是为了分析在两个样品中出现的极小, 所以对于齐曼理论所预测的行为就不再赘述.

对于 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ 样品在低温下出现的浅极小值, 如图 3 所示, 从 1.9K 到 15K, 可以分别用 $-\ln T$ 和 $-\sqrt{T}$ 拟合. 其中 $-\ln T$ 可以看作是双能级散射的贡献. 双能级散射是非晶中的一种典型激发, 在无序固体中存在无序的小原子团, 如果具有两个平衡位置, 且电子可以在它们之间发生隧道效应, 这就形成了双能级系统. 而 $-\sqrt{T}$ 项则是电子-电子相互作用的贡献. 我们知道, 金属中的电子之间有强的长程库仑相互作用, 但大多数情况下, 单电子近似仍是很好的近似, 重要的原因是库仑相互作用受到电子云的屏蔽. 在非晶合金中, 电子-电子相互作用是推迟的, 电荷分布的突然改变不能被立即屏蔽, 原因是电子以扩散的方式运动, 完成屏蔽需要时间.

另外, 双能级不应当观测到对外加磁场有任何的依赖关系^[17]. 而电子-电子相互作用则预测到电阻应与磁场有明显的依赖关系^[10, 18], 电阻随磁场增加而增大^[19]. 对 $\text{Cu}_{50}\text{Ti}_{50}$ 和 $\text{Cu}_{65}\text{Ti}_{35}$ 的实验结果表明^[18], 低温下在磁场大小为 3T 的情况下, 由电子-电子相互作用产生的磁阻即可有 10^{-3} 量级的变化, 而我们对样品在 5K 下加磁场到 7T, 并没有发现电

阻随磁场有明显的改变, 说明不应该是电子-电子相互作用在其中起主要作用, 与方差检验的结果是一致的. 当然, 此处的 $-\ln T$ 项也不可能来自近藤效应, 因为磁场会抑制自旋反转散射, 从而加磁场也会使低温电阻发生很大的改变, 所以此处该项应为双能级的贡献. 拟合到的 $-\ln T$ 的系数为 7.75×10^{-4} , 与铅基金属玻璃^[20]以及理论值相符合.

在 $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$ 样品中极小值出现在室温附近, 而且满足 $-\ln T$ 关系. 在非晶合金中双能级模型也预测到了 $-\ln T$ 项, 但是双能级激发是一种低能量激发, 其出现的温度一般都在 20K 以下^[11], 不可能出现在室温附近. 而且此处拟合的系数为 0.00984, 比双能级要大两个量级. 考虑到我们的样品是铁磁的, 似乎也不应该出现近藤型散射. Grest 等提出了一种改进的近藤模型^[21], 他们的计算表明, 如果在铁磁体中有反铁磁的交换作用存在的话, 那么在样品有效场分布中, 必定会有少量的原子处在零场下, 这样电阻率极小就来源于铁磁非晶合金中内场为零或很小区域局域磁矩的自旋反转散射. 在我们的样品中, Mo 原子就具有这样的作用. 例如在铁磁非晶合金系统 $\text{Fe}_{70}\text{Ni}_{12-x}\text{Mo}_x\text{B}_{16}\text{Si}_2$ 中^[22], 随着 Mo 含量的增大, x 从 0 变到 6 时, 样品的居里温度从 700K 逐渐下降到 476K, $\text{Sm}_2(\text{Fe}, \text{Al}, \text{Mo})_7\text{C}_{1.5}$ 的磁性测量也说明了 Mo 原子与 Fe 原子之间存在反铁磁交换作用^[23]. 那么在我们的样品中, 在接近室温的地方出现极小也就得到了解释. 在从极小值温度到室温之间, R/R_{\min} 也可以由下式给出:

$$R/R_{\min} = R_0 - B'' \ln T + C'' T^2, \quad (4)$$

式中 B'' , C'' 分别为系数. 对上式求极值, 当 $T = T_{\min}$ $= \sqrt{\frac{B''}{2C''}}$ 时, 电阻率为最小. 我们拟合得到的参数分别是 B'' 为 5.69×10^{-2} , C'' 为 4.01×10^{-7} , 与文献中的量级相一致^[24]. 这样可以求得 T_{\min} 为 266.4K, 与实验结果吻合得很好. 值得注意的是此处拟合得到的 $-\ln T$ 项的系数 B'' 比 120—266K 温度区间拟合的系数 B' 要大, 说明此时样品中可能存在别的结构近藤机理, 内自由度不一定起源于双能级系统近似下

的结构涨落,任何局域的内自由度^[17],如局域声子波模,或者局域电子态,都可能使自旋翻转,在比较高的温度范围内贡献 $-\ln T$ 项,使得 B'' 比 B' 大.

下面讨论 T_{\min} 以上 T^2 项的来源,首先不可能来自电-声子散射,因为在低温端已经有 T^2 声子项,其系数为负,与推广的齐曼理论符合得很好.那么能够产生 T^2 项的只能是自旋波散射了^[24,25].由于 Mo 原子的反铁磁作用,使得合金的铁磁耦合减弱,从而自旋波散射 T^2 项系数 C'' 减小,导致了室温附近才出现极小值.下一步的工作包括磁阻的测量,以及减小 Mo 原子的含量,观察极小值的变化情况.对 Cu 基样品则可观测退火对输运性质的影响.

4. 结 论

本文测量了非磁 $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ 的和铁磁的

$\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$ 非晶样品的低温电阻温度曲线.

1. 两个样品中都出现了极小值,铜基样品中出现的浅极小并没有改变电阻温度系数,且极小出现在较低的温度(15K),分析表明极小的起因是由于双能级机理,而铁基样品的极小出现在室温附近,并且在极小值温度以上表现出正的电阻温度系数,产生极小的原因归因于近藤效应.

2. 在两个样品中,始终都出现结构无序电阻项, Cu 基样品在大于15K的范围, Fe 基样品在80K以下,都可以用推广的齐曼理论拟合,说明在该温度区间,电声子散射作用占主导地位,也可以看出,非晶结构是负电阻温度系数主要起因.

3. 磁性状态对输运的影响较大,铁基样品中 Mo 原子的存在导致了近藤型散射,使得在266K处出现极小值,而自旋波散射则使得室温附近电阻温度系数由负变正.

-
- [1] Cochrane R W and Strom-Olsen J O 1977 *J. Phys.* F **7** 1799
- [2] Lee P A and Ramakrishnan T V 1985 *Rev. Mod. Phys.* **57** 287
- [3] Shen B G *et al* 1997 *J. Appl. Phys.* **81** 4661
- [4] Li Z *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 652 (in Chinese) [李 正等 2003 物理学报 **52** 652]
- [5] Li Z *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1461 (in Chinese) [李 正等 2003 物理学报 **52** 1461]
- [6] Bai H Y *et al* 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2697
- [7] Zhang J *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1747 (in Chinese) [张杰等 2001 物理学报 **50** 1747]
- [8] Olivier M *et al* 1987 *Phys. Rev. B* **35** 333
- [9] Cochrane R W *et al* 1975 *Phys. Rev. Lett.* **35** 676
- [10] Roy S B *et al* 1988 *J. Phys.* F **18** 2625
- [11] Cochrane R W *et al* 1975 *Phys. Rev. Lett.* **35** 676
- [12] Lee P A and Ramakrishnan T V 1982 *Phys. Rev. B* **26** 4009
- [13] Hasegawa R and Tsuei D C 1970 *Phys. Rev. B* **2** 1631
- [14] Nagel S R 1977 *Phys. Rev. B* **16** 1694
- [15] Cote P J and Meisel L V 1977 *Phys. Rev. Lett.* **39** 102
- [16] Wang Q *et al* 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1355 (in Chinese) [王强等 2001 物理学报 **50** 1355]
- [17] Luborsky F E 1989 *Amorphous Metallic Alloys* (Beijing : Publishing House of Metallurgical Industry) p552 (in Chinese) [卢博斯基 F E 1989 非晶态金属合金(北京 冶金工业出版社)第552页]
- [18] Howson M A and Greig D 1983 *J. Phys.* F **13** L155
- [19] Lee P A and Ramakrishnan T V 1982 *Phys. Rev. B* **26** 4009
- [20] Tong C Z *et al* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1559 (in Chinese) [佟存柱等 2002 物理学报 **51** 1559]
- [21] Grest G S and Nagel S R 1979 *Phys. Rev. B* **19** 3571
- [22] Bhatnagar A K *et al* 1994 *J. Appl. Phys.* **76** 6107
- [23] Tang W *et al* 1998 *J. Magn. Magn. Mater.* **186** 115
- [24] Srinivas S *et al* 1999 *J. Non-Cryst. Solids* **248** 211
- [25] Richter R *et al* 1979 *Phys. Stat. Sol. (b)* **95** 473

A study on the resistance minima in an amorphous alloy at low temperature *

Huang Zhi^{1,2)} Bai Hai-Yang²⁾ Jing Xiu-Nian²⁾ Wang Zhi-Xin²⁾ Wang Wan-Lu¹⁾

¹⁾(*Department of Applied Physics , Chongqing University , Chongqing 400044 , China*)

²⁾(*Institute of Physics , Chinese Academy of Sciences , Beijing 100080 , China*)

(Received 4 June 2003 ; revised manuscript received 18 January 2004)

Abstract

In this paper , we study the electrical resistance of non-magnetic amorphous alloy $\text{Cu}_{60}\text{Zr}_{20}\text{Hf}_{10}\text{Ti}_{10}$ and amorphous ferromagnet $\text{Fe}_{61}\text{Co}_7\text{Zr}_{10}\text{Mo}_5\text{W}_2\text{B}_{15}$. We fit the curve in the light of special models , and analyze the origination of the minima which occurs in both of the samples . The contributions both from the disorder structure and magnetic status are discussed .

Keywords : amorphous alloy , resistance , minima

PACC : 6140D , 7215C

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50225101 , 50171075 , 50031010) .