

Sm_{0.99}Gd_{0.01}Al₂ 金属间化合物的声学和比热容性质研究 *

苏金瑞¹⁾ 王克勤²⁾ 屈继锋¹⁾ 朱长飞¹⁾

1) 中国科学技术大学材料科学与工程系内耗与固体缺陷实验室, 合肥 230026

2) 中国科学技术大学理学院, 合肥 230026

摘要 用感应悬浮冷坩锅法制备了单相性良好的 Sm_{0.99}Gd_{0.01}Al₂ 多晶金属间化合物. 对其低温的声学和比热容性质进行了研究, 得到了样品模量和声衰减以及随温度变化的规律. 研究表明, 在磁相变附近, 样品的声学性质有剧烈的反常现象. 比热容测量的结果表明这是一个二级相变. 结合样品的磁性性质, 对其声学特性进行了分析.

关键词 金属间化合物 Sm_{0.99}Gd_{0.01}Al₂, 模量, 声衰减, 比热容

中图分类号 TG146.45, O429 **文献标识码** A **文章编号** 0412-1961(2003)11-1186-03

ACOUSTICAL PROPERTIES AND SPECIFIC HEAT CAPACITY OF Sm_{0.99}Gd_{0.01}Al₂ INTERMETALLICS

SU Jinrui¹⁾, WANG Keqin²⁾, QU Jifeng¹⁾, ZHU Changfei¹⁾

1) Key Laboratory of Internal Friction and Defects in Solids, Department of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology of China, Hefei 230026

2) School of Science, University of Science and Technology of China, Hefei 230026

Correspondent: SU Jinrui, lecturer, Tel: (0551)3602939, Fax: (0551)3602940, E-mail: jrsu@ustc.edu.cn

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.50001011) and Youth Foundation

of University of Science and Technology of China

Manuscript received 2003-07-09

ABSTRACT Polycrystalline Sm_{0.99}Gd_{0.01}Al₂ with single phase structure was prepared by cold crucible induction levitation method. The acoustical properties and specific heat of sample at low temperatures were studied, and the temperature dependences of modulus, sound attenuation and specific heat were obtained. The results show that the acoustical properties of sample display enormous anomalies in the vicinity of magnetic phase transition. Specific heat results manifest the magnetic phase transition to be a second order one. Analysis was made to the acoustical properties with consideration of its magnetic properties.

KEY WORDS intermetallics Sm_{0.99}Gd_{0.01}Al₂, modulus, sound attenuation, specific heat capacity

轻稀土元素 Sm 的离子具有独特的磁性, 其电子轨道磁矩和自旋磁矩的大小相近, 但由于自旋-轨道磁矩的反平行耦合, 导致两者磁矩几乎完全相互抵消. 在 SmAl₂ 金属间化合物中, Al 为非磁性组分, 其磁性来源于 Sm³⁺. 它在磁有序温区的磁性性质类似于亚铁磁体. 其中, 轨道磁矩略大于自旋磁矩. 由于 Sm³⁺ 轨道磁矩和自旋磁矩的温度依赖不同, 故以适量的 Gd(其自旋磁矩大于轨道磁矩) 取代 SmAl₂ 中的 Sm 后, 可得到在磁有序温区中出现一个磁性抵消点(即材料的整体磁性为零)的铁磁体^[1].

处于磁性抵消点的温度时, 这种材料仍保持自旋铁磁有序. 抵消点处的特性使得这类材料可以作为带电粒子的自旋处理器件, 在自旋电子学领域发挥作用^[1,2].

本文报道了具有磁性抵消点的 Sm_{0.99}Gd_{0.01}Al₂ 金属间化合物的低温比热容和声学特性测量结果, 并进行了相关分析.

1 实验方法

将合适配比的纯金属原料(99.9% 的 Sm 和 Gd, 以及 99.999% 的 Al) 在保护性氩气氛下的感应悬浮冷坩锅中熔炼, 得到 Sm_{0.99}Gd_{0.01}Al₂ 金属间化合物. X 射线衍射结果表明, 样品的单相性良好, 为立方 C15 型(MgCu₂) 结构, 晶格常数为 0.794 nm. 采用绝热连续升温法测试绝对比热容^[3]. 超声的声速和衰减采用脉冲回波重合法在 MATEC 7700 精密超声测量系统上进行^[4]. 声频测试^[5] 的样品为扁平棒状, 两端贴上矽钢片以便于进行电

* 国家自然科学基金 50001011 和中国科学技术大学青年基金资助项目

收稿日期: 2003-07-09

作者简介: 苏金瑞, 女, 1974 年生, 讲师, 博士

磁激发. 样品的共振频率在 10^3 Hz 范围.

2 实验结果与分析

由图 1 的比热容 - 温度 ($c-T$) 曲线可见, 在 123 K 附近, 比热容有一明显的跳跃, 它对应该处发生的由低温到高温的铁磁 - 顺磁相变^[1,6]. 比热容的结果说明, 与大部分的磁相变相同, 此相变为一个二级相变.

图 2 为样品的声频测量结果. 从图可见: 在降温至 135 K 左右时, 样品的模量开始剧烈地减小; 至 98 K 左

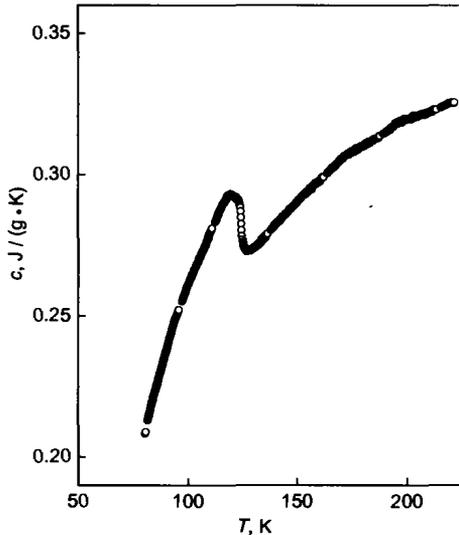


图 1 $\text{Sm}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{Al}_2$ 的比热容 - 温度曲线

Fig.1 Specific heat capacity (c)-temperature (T) curve of $\text{Sm}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{Al}_2$

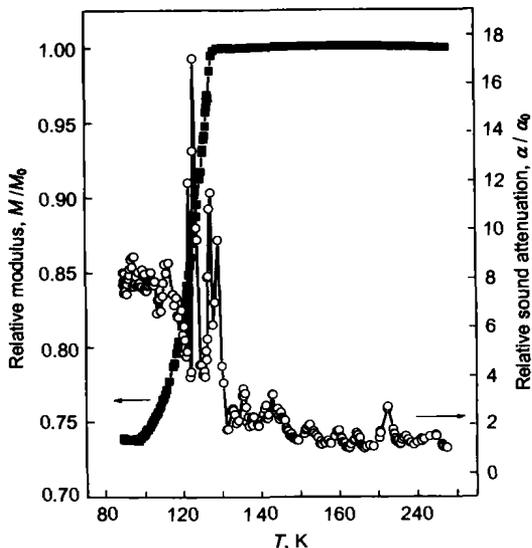


图 2 $\text{Sm}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{Al}_2$ 的相对模量和相对声衰减随温度的变化

Fig.2 Temperature dependences of relative modulus and relative sound attenuation of $\text{Sm}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{Al}_2$ (M_0 and α_0 denoting the relative modulus and relative sound attenuation at 254 K respectively)

右达到最小值; 温度继续降低时, 模量变化非常小. 这一段模量急剧软化导致的相对模量总降低量约有 26%. 与此同时, 声衰减也随着温度的降低, 在这一温区急剧上升, 98 K 处的相对声衰减约为 135 K 处的 4 倍. 由于这一温区内的样品共振频率变化非常快, 导致声衰减的测量不一定处于样品的共振状态, 所以导致衰减值有大的起伏和偏差, 以致于不能确定此温区是否形成了明显的声衰减峰. 此样品在 123 K 左右发生了铁磁相变, 所以上述的超声异常应该与此磁性相变有密切关系. 根据 Landau 等^[7,8]的二级相变理论, 在相变附近的自旋的临界涨落与声波的声学声子相互作用将导致声衰减和模量的异常, 往往会在相变点的低温边出现一个声衰减峰. 本工作的结果中相变附近的模量变化非常大, 这么大的变化应当不只是由序参数的涨落 (磁矩) 与声子的相互作用所引起, 可能还存在其它的相互作用的机制. 如是否存在电 - 声子相互作用和声波声子与晶格的耦合作用. 而且许多二级相变附近的模量在相变点附近软化达到最低, 在本工作的结果中, 模量的软化在经过相变点后, 还持续了一段温区, 也表明声波与除序参量外其它量的耦合的存在.

另外, 根据本工作的磁性测量的结果和文献 [1] 的报道, 所用样品在 95 K 左右会出现磁性抵消点, 在抵消点和铁磁相变的 Curie 温度之间, 材料中的电子自旋磁矩大于轨道磁矩对总磁矩的贡献 (两者符号相反); 而在抵消点温度之下, 则轨道磁矩的绝对值超过了自旋磁矩, 这与纯 SmAl_2 金属间化合物磁有序温区的磁矩情况相同. 从比热容和声频测量的结果来看, 在材料的磁性抵消点附近均没有异常出现, 而这些实验对磁有序的出现和变化非常灵敏^[9,10], 这也证实了如下观点: 即在抵消点处的磁有序确实存在, 且变温通过此点时材料中的磁有序状况无突然变化. Adachi 等^[2]的可控入射同谱辐射极化方向的 Compton 磁散射实验结果也有力证明了在磁抵消点该材料中存在稳定的自旋铁磁序.

本工作对材料的超声性质进行了测量, 采用的超声频率为 10 MHz. 在磁相变处的现象与声频测量的结果一致. 即在降温至相变附近时, 声速急剧下降, 同时衰减迅速增加; 继续降温至磁有序温区, 衰减仍保持很大的值. 升温过程中此现象可以重复. 纵波和横波的实验都出现了这样的现象. 这表明自旋 - 声子相互作用的类型主要是线性磁致伸缩. 若有效磁弹性耦合的类型主要是体磁致伸缩, 则往往只有纵波的声速和衰减会发生异常, 而横波不会^[11]. 由于相变附近和相变以下温区的声衰减非常大, 以致于本文作者在这些温度下无法对其超声参数进行准确测量, 这影响了对结果的进一步分析和讨论.

考虑到样品中声学特性的异常与磁相变密切相关, 预期在声学测量过程中对样品施加强磁场, 改变样品的磁化状态, 将有望对自旋涨落有所抑制, 使声衰减降低, 从而得到更丰富的信息.

3 结论

通过对有磁性抵消点的多晶单相 $\text{Sm}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{Al}_2$ 金属间化合物的比热容、声频和超声参数的测量和分析, 可得到以下结论:

(1) 样品中 123 K 附近的顺磁 - 铁磁性转变为二级相变.

(2) 在磁相变附近声频和超声得到的样品模量和声衰减均发生了剧烈的变化, 即由顺磁到铁磁态时, 模量的巨大软化和衰减的增大. 进一步分析表明, 磁相变处存在自旋涨落和声波的强烈相互作用, 磁弹性耦合类型主要是线性磁致伸缩. 除此之外, 声学参数的巨大变化还表明, 在相变附近存在其他的量与声波的相互作用.

(3) 在磁性抵消点附近比热容和声学参量未发现异常, 间接表明了磁性抵消点处的自旋铁磁有序的存在.

参考文献

[1] Adachi H, Ino H. *Nature*, 1999; 401: 148

- [2] Adachi H, Kawata H, Hashimoto H, Sato Y, Matsumoto I, Tanaka Y. *Phys Rev Lett*, 2001; 87: 127202-1
- [3] Wang K Q, Zhuang Z Z. *Chin J Low Temp Phys*, 1996; 18: 339
(王克勤, 庄志忠. 低温物理学报, 1996; 18: 339)
- [4] Wang H F, Wu Z Q. *Experimental Methods for Solid State Physics*. Beijing: Higher Education Press, 1990: 161
(王华馥, 吴自勤. 固体物理实验方法. 北京: 高等教育出版社, 1990: 161)
- [5] Nowick A S, Berry B S. *Anelastic Relaxation in Crystalline Solids*. London: Academic Press, 1972: 588
- [6] Qu J F. *Thesis for Bachelor's Degree*, University of Science and Technology of China, Hefei, 2001
(屈继锋. 中国科学技术大学学士学位论文, 合肥, 2001)
- [7] Landau L D, Lifshitz E M. *Statistical Physics*. New York: Pergamon Press, 1958: 430
- [8] Landau L D, Khalatnikov S M. *Doklady Akad Nauk SSSR*, 1954; 96: 469
- [9] Rosen M. *Phys Rev*, 1968; 174: 504
- [10] Rosen M. *Phys Rev*, 1969; 180: 540
- [11] Bennett H S, Pytte E. *Phys Rev*, 1967; 155: 553