

Sm_{1-x}Gd_xAl₂ 低温下的磁性^{*}

吴子华¹⁾²⁾ 雒建林^{2)†} 陈兆甲²⁾ 刘广同²⁾ 王楠林²⁾ 王克勤³⁾ 王万录¹⁾

¹⁾ 重庆大学数理学院应用物理系, 重庆 400044)

²⁾ 中国科学院物理研究所, 北京 100080)

³⁾ 中国科学技术大学理学院, 合肥 230026)

(2004 年 5 月 19 日收到, 2004 年 6 月 15 日收到修改稿)

分别测量了 Sm_{1-x}Gd_xAl₂ 在低温下不同外加磁场时的电阻和磁化率. 实验结果表明, 铁磁性物质 Sm_{1-x}Gd_xAl₂ 在居里温度以下时, 自旋磁矩和轨道磁矩反平行有序排列, 且对温度的依赖关系不同, 导致在磁性抵消点出现自旋铁磁有序而总磁矩为零的磁现象. 并发现外加强磁场时自旋-轨道发生翻转.

关键词: Sm_{1-x}Gd_xAl₂, 铁磁有序, 自旋磁矩, 轨道磁矩

PACC: 6170T, 6780J, 7525, 7550C

1. 引 言

铁磁性稀土合金 SmAl₂ 的磁性来源于 Sm³⁺, Al 为非磁性组分. 铁磁性物质的最基本特征是近邻原子由于相互作用而使自旋磁矩具有相同的方向. 在居里温度以下, 具有强的自发磁化. Sm³⁺ 具有独特的磁性质^[1-5], 其轨道磁矩对总磁矩的贡献与自旋磁矩的贡献相近, 在磁有序温区, 由于自旋-轨道之间的相互作用, 使自旋磁矩和轨道磁矩反平行排列, 总磁矩几乎为零. 由于轨道磁矩和自旋磁矩对温度的依赖关系不同, 在磁有序温区的磁性类似于亚铁磁体, 其中轨道磁矩对总磁矩贡献略大于自旋磁矩. 研究表明^[6-8], 用适量的轨道磁矩为零的 Gd³⁺ 取代 Sm³⁺, 在某一温度(磁性抵消点)出现自旋铁磁有序的材料总磁矩为零的奇特现象. 磁性抵消点处的这种材料虽然保持着自旋的铁磁有序, 但并不表现出宏观磁性的特性. 可以作为带电粒子的自旋处理器件, 在自旋电子学领域有着广泛的应用.

稀土元素 Sm 与大多数稀土(只有基态对其磁性有贡献)不同, 其第一激发态与基态之间的能隙很小(只有 1400K), 对磁性有很大的影响^[6]. 这导致其自旋磁矩和轨道磁矩与温度之间的依赖关系不再相

同, 表现出独特的磁特性. Adachi 等人^[6,7] 首先用 Gd³⁺ 取代 SmAl₂ 中的 Sm³⁺, 发现磁性抵消点存在, 并且从实验上证明了在磁性抵消点处自旋仍保持着铁磁有序. Taylor 等人^[9] 对 Sm_{0.982}Gd_{0.018}Al₂ 的自旋磁矩和轨道磁矩在磁性抵消点附近与温度的依赖关系进行了研究. 本文对低温下的 Sm_{1-x}Gd_xAl₂ (x = 0.0098, 0.019, 0.03), 无外磁场和存在外加磁场时的电阻和磁化率进行了研究, 发现类似于亚铁磁性的铁磁合金 Sm_{1-x}Gd_xAl₂ 磁性抵消点温度随 x 增加向低温移动, 在较强的外磁场作用下, 自旋和轨道的磁矩取向在磁性抵消点处发生翻转, 但出现磁性抵消点的温度不会改变.

2. 实验方法

Sm_{1-x}Gd_xAl₂ 合金是用磁感应炉合成的. 将适量的金属原料(纯度为 99.9% 的 Sm 和 Gd, 99.999% 的 Al) 在氩气氛围下进行熔炼, 得到 Sm_{1-x}Gd_xAl₂ 多晶样品. X 射线衍射和化学分析的结果表明, 样品的单相性良好, 所得到样品的 x 值分别为 0.0098, 0.019 和 0.03. 样品的电阻和磁矩用 PPMS (physical property measurement system) 系统进行测量.

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 10274101)资助的课题.

[†] E-mail: jlluo@iphy.ac.cn

3. 实验结果

图 1 表示 $x = 0.019$ 的 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ 样品的电阻率, 在不同外磁场下随温度变化曲线. 图中在 125K 以上温度范围, 以及 125K 至 16K, 无外磁场以及外加 1T 和 12T 磁场时的电阻率均随温度线性变化, 且电阻率在 125K 处出现折变, 说明在此处发生顺磁-铁磁的二级相变. 16K 以下温度区域的电阻率为数值很小的定值, 这是杂质引起的剩余电阻. 外加场为 12T 时的电阻率比无外场时整体稍稍向上平移, 外场为 1T 时的电阻率与无外场时几乎无任何变化. 因此, 材料的磁电阻很小.

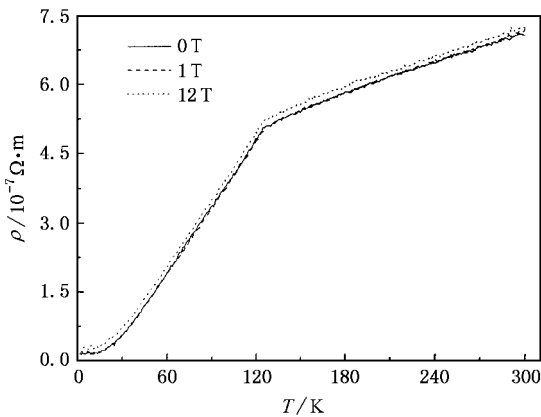


图 1 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ ($x = 0.019$) 的电阻率与温度的关系

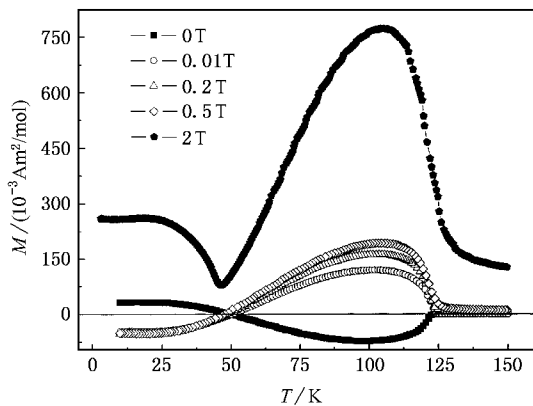


图 2 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ ($x = 0.03$) 的磁矩与温度的关系

图 2 是 $x = 0.03$ 的 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ 样品在无外加磁场和外加磁场时, 磁矩与温度的关系曲线. 可以看出, 零场时, 在高于 125K 的温度范围内, 磁矩为零. 在 125K 附近, 磁矩突然增大, 发生铁磁相变, 出现自

发磁化. 在 125K 和 50K 之间, 磁矩先增大后减小. 温度为 50K 时, 磁矩变为零, 这一点称为磁性抵消点. 温度继续减小时, 磁矩随温度的减小继续增加, 最后达到饱和. 外加强磁场 (0.01T, 0.2T 和 0.5T) 时, 磁矩平行于 x 轴向上整体平移少许, 温度低于 125K 时, 磁矩随温度降低急剧增加, 达到最大值后, 磁矩随温度减小而减小. 在 50K 处经过零点后, 磁矩又随温度的减小而增大. 外加磁场变大时, 磁矩的变化幅度增大.

图 2 中 $\text{Sm}_{0.97}\text{Gd}_{0.03}\text{Al}_2$ 加外场 2T 时, 磁矩在整个温区均指向外加磁场的方向. 加强的外场时磁矩明显向上平移很多. 在磁抵消点温度以下, 减弱的外磁场时 $\text{Sm}_{0.97}\text{Gd}_{0.03}\text{Al}_2$ 的磁矩方向与外场反平行, 随温度减小, 逐渐偏离 x 轴. 而加强场时磁矩方向与外磁场相同, 随温度的减小逐渐偏离 x 轴.

$x = 0.0098$ 和 $x = 0.019$ 的 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ 样品在加磁场和不加磁场时的磁矩与温度的关系曲线分别为图 3 与图 4. 其磁矩与温度的关系和 $x = 0.03$ 样品基本一样. 区别在于抵消点温度不同, $\text{Sm}_{0.9902}\text{Gd}_{0.0098}\text{Al}_2$ 在 97.3K, $\text{Sm}_{0.981}\text{Gd}_{0.019}\text{Al}_2$ 于 83K 处, 磁矩为零. 抵消点温度随 x 值的增大而减小. 图 3 中的插图是 $\text{Sm}_{0.9902}\text{Gd}_{0.0098}\text{Al}_2$ 磁矩无外场时与温度的关系曲线.

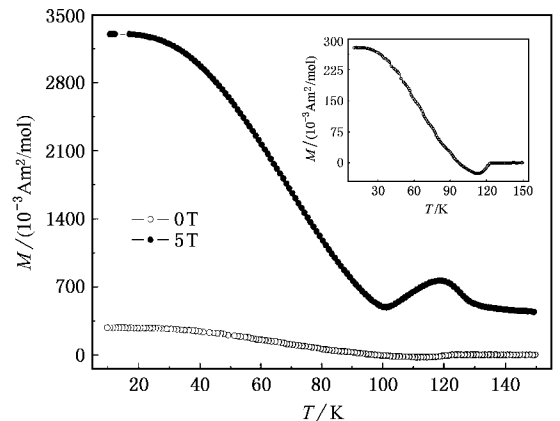


图 3 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ ($x = 0.0098$) 的磁矩与温度的关系

图 5 是外磁场为零, x 取不同值时 ($x = 0.0098, 0.019, 0.03$) 的磁矩与温度的关系. 在温度高于 125K 时, 磁矩均为零. 在 125K 以下温区, 三者的磁矩随温度的变化趋势相同, 但磁性抵消点温度不同, 分别在 97.3K, 83K, 50K (即它们的磁性抵消点) 磁矩为零. 随 x 取值的增大, 磁性抵消点逐渐向低温移动, 且相同温度下的磁矩随 x 取值增大而减小.

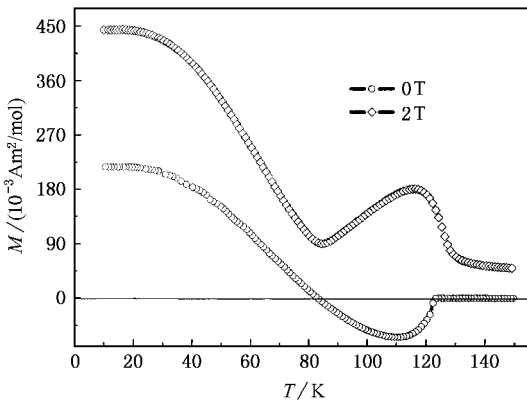


图 4 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ ($x = 0.019$) 的磁矩与温度的关系

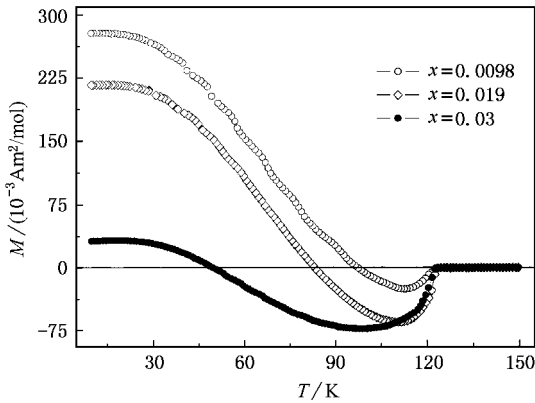


图 5 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ 的磁矩与温度的关系

4. 讨 论

SmAl_2 是一种铁磁性的合金^[1-4]. 铁磁性合金的电阻由三部分组成^[10,11], 即

$$\rho(T) = \rho_r + \rho_L(T) + \rho_M(T), \quad (1)$$

其中 ρ_r 为杂质和缺陷的散射所引起的剩余电阻, 声子对电子的散射产生的电阻为 $\rho_L(T)$ 以及与磁有序有关的散射所导致的电阻 $\rho_M(T)$, 其中后两项为与温度有关的量. $\rho_L(T)$ 随温度的升高而增加, $\rho_M(T)$ 在高于居里温度的温区, 因自旋已完全无序, 趋近于与温度无关的饱和值.

图 1 中 $\text{Sm}_{0.981}\text{Gd}_{0.019}\text{Al}_2$ 电阻在 125K 产生折变, 这一点是从顺磁到铁磁的相变点. $T = 125\text{K}$ 为这种材料的居里温度, 与 SmAl_2 的转变温度相同^[2,12]. 从磁矩变化可以看出(顺磁温度下的自发磁化为零), x 取不同值时居里温度没有变化. 16K 以下温区的

电阻仅是剩余电阻 ρ_r , 其不随温度变化. 而随温度变化的电阻 $\rho_L(T)$ 和 $\rho_M(T)$ 已经变为零. 比较有外加磁场和无外加磁场时的电阻可以看出, 磁场对多晶样品的声子散射产生的电阻 $\rho_L(T)$ 和与磁有序有关的散射所导致的电阻 $\rho_M(T)$ 没有影响, 这是因为整个温区电阻加磁场时所产生的变化, 与低于 16K 温度时电阻变化相同, 而这时 $\rho_L(T)$ 和 $\rho_M(T)$ 已经变为零.

在居里温度以下的磁有序温度范围内, 4f 电子的单离子哈密顿量由自旋-轨道之间相互作用, 晶场导致的势能和相互作用交换能组成^[2], 即

$$H = \lambda L \cdot S + H_C - 2J_{\text{ff}} S_Z S_Z, \quad (2)$$

其中 λ 为自旋-轨道相互作用常数, J_{ff} 表示离子间的交换积分, L, S 是 4f 电子的轨道和自旋算符. 相互作用能采用了平均场近似, 并选取磁矩的有序化方向平行于晶格 c 轴的方向^[13-15].

通过哈密顿量对角化可以得到能量的本征向量和本征值, 并采用自洽的方法得到 S_Z , 因此每个离子的总磁矩可以写为

$$m_{\text{total}} = m_{4f} + m_{\text{cond}}, \quad (3)$$

其中

$$m_{4f} = -\mu_B L_Z + 2S_Z, \quad (4)$$

$$m_{\text{cond}} = -2\mu_B J\rho S_Z, \quad (5)$$

所以

$$\begin{aligned} m_{\text{total}} &= -\mu_B L_Z + 2S_Z - 2\mu_B J\rho S_Z \\ &= -\mu_B L_Z - 2\mu_B(1 + J\rho) S_Z. \end{aligned} \quad (6)$$

这里 m_{4f}, m_{cond} 分别表示 4f 电子的磁矩和导电电子的磁矩. J 是组成 4f 电子与导电电子交换积分的零波矢, ρ 是每个原子在费米面上的态密度^[2,16,17]. $|\mu_B L_Z|$ 为轨道磁矩对总磁矩的贡献, $|2\mu_B(1 + J\rho) S_Z|$ 是自旋磁矩对总磁矩的贡献.

根据 Wigner-Eckart 定理, 由于大多数稀土元素的激发态对磁性没有贡献, 因而其自旋磁矩和轨道磁矩的比在任何温度下均为一个常数^[2]. 但稀土合金 SmAl_2 中的磁性离子 Sm^{3+} 的第一激发态与基态之间的能量差很小, 仅为 1400K ^[3]. 激发态不再对磁矩没有贡献, 导致自旋磁矩和轨道磁矩对温度的依赖关系不同. SmAl_2 是一种铁磁性材料^[1,16], 而每一个 Sm^{3+} 的自旋磁矩和轨道磁矩对总磁矩的贡献数值非常接近, 其中轨道磁矩贡献 $|\mu_B L_Z|$ 略大于自旋磁矩贡献 $|2\mu_B(1 + J\rho) S_Z|$. 由于两者之间的相互作用使轨道与自旋反平行排列, 几乎完全抵消, 因

此其在磁有序温区的磁性与亚铁磁体的特征非常相似。

在图 2 至图 4 中, $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ 在 125K 处发生铁磁性相变, 磁矩从无序进入有序阶段. 在高于 125K 的温区, 无外加磁场时总磁矩为零, 处在无序的顺磁温度范围内. 在居里温度和磁性抵消点之间, 自旋磁矩对总磁矩的贡献 $|2\mu_B(1+J\rho)S_z|$ 大于轨道磁矩的贡献 $|\mu_B L_z|$ (轨道与自旋反平行排列). 而低于磁性抵消点温度时, 轨道磁矩对总磁矩的贡献大于自旋磁矩. 用少量的自旋磁矩大于轨道磁矩的 Gd^{3+} 取代 Sm^{3+} 后, 因为自旋磁矩和轨道磁矩对温度的依赖关系不同, 在某一特定的温度(磁性抵消点), 反平行有序排列的自旋磁矩和轨道磁矩对总磁矩贡献相等 ($|2\mu_B(1+J\rho)S_z| = |\mu_B L_z|$), 这时铁磁性材料 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ 的磁矩为零^[6,7], 但仍然保持着自旋的铁磁有序. 对材料比热的测量结果和极化的 Compton 磁散射实验结果证明了这一点^[7,10,18]. 即抵消点处的自旋铁磁有序确实存在, 且变温通过此点时材料的磁有序状况没有变化. 进一步的实验表明^[6], 磁性抵消点是由于加入自旋磁矩较大的杂质引起的, 而不是因为杂质对晶格的影响造成的(晶格对导电电子极化引起的自旋磁矩的变化有较大的影响).

由于 Gd^{3+} 的轨道磁矩为零, 磁矩完全来源于自旋磁矩, 所以随 x 取值的不断增加, 材料中自旋磁矩的比例不断增加, 图 5 中的 x 取不同值时磁矩随温度变化的三条曲线说明了这个问题. 随掺杂的杂质质量 x 的增大, 引入的自旋磁矩不断增多, 材料的总磁矩不断减小, 磁性抵消点不断向低温移动. $\text{Sm}_{0.902}\text{Gd}_{0.098}\text{Al}_2$ 在 97.3K, 而 $\text{Sm}_{0.981}\text{Gd}_{0.019}\text{Al}_2$ 和 $\text{Sm}_{0.97}\text{Gd}_{0.03}\text{Al}_2$ 分别为 83K 和 50K. 但顺磁向铁磁的相变点几乎没有变化.

存在外加强磁场时, $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ 在磁有序温度范围里的总磁矩方向将保持与外磁场一致. 这意味着自旋磁矩和轨道磁矩在经过磁性抵消点时, 将发生翻转. 无外场时, 在居里温度和磁性抵消点之间, 自旋磁矩对总磁矩的贡献大于轨道磁矩, 总磁矩方

向是自旋磁矩的方向. 温度低于磁性抵消点时, 轨道磁矩的贡献超过自旋磁矩, 总磁矩将沿轨道磁矩的方向. 在抵消点的前后, 自旋和轨道方向没发生变化. 轨道磁矩与自旋磁矩是反平行排列的, 所以在无外场时磁性抵消点前后的总磁矩方向是相反的(见图 2 至图 5). 外磁场比较弱时, 不足以使自旋-轨道翻转, 自旋和轨道在整个磁有序范围内, 方向没发生改变, 总磁矩在磁性抵消点前后取相反的方向(见图 2). 但外磁场使多晶材料的磁矩发生极化, 引起总磁矩随外加磁场的增加而向上移动. 外磁场比较强时, 抵消点前后的总磁矩均取外磁场的方向(见图 2 至图 4). 而在居里温度与抵消点之间, 总磁矩沿自旋磁矩的方向. 抵消点温度以下, 总磁矩取轨道磁矩的方向. 这说明在居里温度与抵消点之间, 自旋磁矩沿外磁场的方向, 轨道磁矩沿其反方向(自旋与轨道反平行). 而抵消点以下温度, 轨道磁矩沿外磁场方向, 而自旋磁矩沿外磁场的反方向. 因此在经过磁性抵消点时, 自旋-轨道在外磁场的作用下发生翻转, 自旋磁矩与轨道磁矩在抵消点前和抵消点后取相反的方向.

5. 结 论

本文对 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ 在低温下的磁性进行了研究. 发现, 铁磁性材料 $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ 在磁有序温度范围里存在磁性抵消点. 在这一温度下, 材料保持着自旋的铁磁有序, 而总磁矩为零. 这是因为 Sm^{3+} 的第一激发态与基态的能隙比较小, 只有 1400K, 使得自旋磁矩与轨道磁矩对温度的依赖关系不同. 在磁性抵消点处, 自旋磁矩对总磁矩的贡献 $|2\mu_B(1+J\rho)S_z|$ 与轨道磁矩的贡献 $|\mu_B L_z|$ 大小相等; 而自旋-轨道反平行耦合, 因此总磁矩为零. 磁性抵消点温度随 x 值的增大而减小. 存在较强的外加磁场时, 自旋磁矩与轨道磁矩在经过抵消点时发生翻转. 自旋的铁磁有序, 但不表现出宏观磁性的特性可以作为带电粒子的自旋处理器件, 在自旋电子学领域具有广泛的应用前景和理论意义.

[1] de Wijn H W et al 1976 *Phys. Stat. Sol. (b)* **76** 11

[2] Adachi H et al 1997 *Phys. Rev. B* **56** 349

[3] Adachi H et al 1999 *Phys. Rev. B* **59** 11445

[4] Stewart A M et al 1993 *Phys. Rev. B* **47** 11242

[5] Zhang L G et al 2003 *Chin. Phys.* **12** 562

[6] Adachi H et al 1999 *Nature* **401** 148

- [7] Adachi H *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 127202
- [8] Grover A K *et al* 1994 *J. Appl. Phys.* **50** 7501
- [9] Taylor J W *et al* 2002 *Phys. Rev. B* **66** 161319
- [10] Feng D and Jin G J 2003 *Condensed Matter Physics*(Volume 1) (Beijing : Higher Education Press) p248 [in Chinese] 冯 端、金 国钧 2003 凝聚态物理学(上卷) [北京 : 高等教育出版社] 第 248 页]
- [11] Zhou J P *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1469 (in Chinese) [周剑 平等 2003 物理学报 **52** 1469]
- [12] Zheng S X *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 555 (in Chinese) [郑思 孝等 2004 物理学报 **53** 555]
- [13] Schieber M *et al* 1968 *J. Appl. Phys.* **39** 885
- [14] Koehler W C *et al* 1972 *Phys. Rev. Lett.* **29** 1468
- [15] McEwen K A *et al* 1974 *J. Phys. F.* **4** 2264
- [16] Kasuya T 1956 *Prog. Theor. Phys.* **16** 45
- [17] Yosida K 1957 *Phys. Rev.* **106** 893
- [18] Xu J *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 947 (in Chinese) [许 杰等 2003 物理学报 **52** 947]

The magnetism of $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ at low temperatures^{*}

Wu Zi-Hua^{1 2)} Luo Jian-Lin²⁾ Chen Zhao-Jia²⁾ Liu Guang-Tong²⁾ Wang Nan-Lin²⁾ Wang Ke-Qin³⁾ Wang Wan-Lu¹⁾

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

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

³⁾ *School of Science, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*

(Received 19 May 2004 ; revised manuscript received 15 June 2004)

Abstract

The resistance and magnetic susceptibility of $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ with $x = 0.0098, 0.019$ and 0.03 have been studied at low temperatures. Spin moments and orbital moments couple antiparallely in this material. The compensation temperature at which the spin moments are equal to orbital ones is observed, and it decreases with increasing x . The spin-orbit flip has been found in a strong field.

Keywords : $\text{Sm}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$, ferromagnetism, spin moment, orbital moment

PACC : 6170T, 6780J, 7525, 7550C

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10274101).