

非晶态 TbFe_2 薄膜的磁性和电性¹⁾

郑德娟 王震西 张殿琳 林淑媛

(中国科学院物理研究所)

刘联璠 蔡延璜 夏克定

(中国科学院上海原子核研究所)

1981年5月13日收到

提 要

本文研究了 TbFe_2 非晶态薄膜的磁性和电性, 测量了 $M_s(T)$ (77—800K), $\rho(T)$ (4.2—400K) 和穆斯堡尔谱 (18K, 400K). 得到居里温度 $T_c \sim 400\text{K}$, 电阻极小值温度 $T_{\min} \sim 360\text{K}$, 在 $T < 360\text{K}$ 范围内观察到温度系数为负的类型 Kondo 效应. 用 Hesse 和 Window 两种不同方法解出了室温穆斯堡尔谱的超精细场, 得到了 $H = 210\text{kOe}$ 和 $H = 25\text{kOe}$ 两种分布, 其中前一组给出了铁磁性, 后一组可能与类型 Kondo 型电阻反常有关. 实验结果还表明, 铁离子自旋受很强的局域各向异性场作用, 这和 Harris 模型相符.

一、引 言

近年来, 稀土-过渡族金属非晶态薄膜的研究一直比较活跃. 稀土元素和过渡族元素的原子半径相差较大, 无须引入金属元素就较易形成无定形结构, 因此在结构上有它的特点. 在磁性上, DyCo_3 非晶态薄膜具有 sperimagnetic 的新型磁结构^[1]; 钆钴和钆铁非晶态薄膜具有垂直膜面的各向异性^[2], 可用作磁泡和磁光存贮材料; TbFe_2 非晶态薄膜具有非常大的磁致伸缩系数 ($\lambda_s \sim 280 \times 10^{-6}$)^[3], 电阻特性也具特色, 存在着潜在的应用可能; 因此对这类材料的研究, 无论从物理上或技术上都引起了很大的兴趣.

1972年 Rhyne^[4] 等人提出: 与相应的晶态相比, 非晶态 TbFe_2 的铁磁转变温度 T_c 从 710K 下降到 388K, 饱和磁矩 $M_s(0)$ 从 $4.7\mu_B/\text{原子}$ 下降到 $2.8\mu_B/\text{原子}$, 变化很大. 若用 Gubanov^[5] 提出的唯象理论解释, 假设非晶态材料中原子的无序排列只是使近邻磁性离子间海森堡耦合常数 J 产生波动, 则其波动幅度必须大到 J 本身的量级才能解释上述的变化. 如此大的波动幅度在绝缘体系统中可能存在, 但在非晶态 TbFe_2 合金中, 其 J 由 RKKY 长程振荡型交换作用所决定, 不太可能.

为此, Harris^[6] 等提出了一种适合于非晶态稀土-铁族合金的新的理论模型, 他们认为每个磁性离子的磁矩大小相等, 但位于很强的混乱取向的局域各向异性场中, 后者决定

1) 本文详细摘要已发表于 J. de Physique Coll., C5, Suppl. (1979), C5-243.

了磁矩的方向。

为了证实 Harris 的局域场海森堡模型, 1974 年 Sarkar^[7] 等测量了一系列非晶态稀土-铁合金样品的穆斯堡尔谱, 结果表明, 对非晶态 HoFe_2 , DyFe_2 , ErFe_2 样品, 在 $T > T_c$ 时, 都有清晰的四极劈裂谱, 并和晶态结果相同。但在 $T < T_c$ 时, 却都没有得到可解析的铁磁谱。Forester^[8] 等虽然对非晶态 DyFe_2 合金得到了可解析的铁磁谱, 但也并没有精确解出其超精细场的分布。

本文介绍了我们在非晶态 TbFe_2 合金中测到的室温可解析的铁磁谱, 分别用 Hesse^[9] 和 Window^[10] 提出的两种不同方法解出了其超精细场的分布^[11], 发现有相当一部分铁离子处于很弱的内场作用下, 这部分处于弱耦合的铁离子就有可能产生类 Kondo 型的低温电阻反常, 电阻测量结果证实了这一推断, 这与 Tsuci^[12] 等人在非晶态 Fe-Pd-P 合金中得到的结果相类似。

穆斯堡尔实验结果还表明, 铁离子自旋受无规取向的局域各向异性场的作用, 但其晶场仍然是确定的, 和 Harris 模型相符。

二、样品制备和实验方法

非晶态 TbFe_2 薄膜样品是用射频溅射方法制备的。先在真空电弧炉内化取 TbFe_2 合金, 制得 $\phi = 35\text{mm}$ 的 TbFe_2 金属靶, 用混有银粉的水玻璃作导电胶, 将靶粘在水冷的阴极上, 衬底放在通液氮冷却的铜底板上, 靶和衬底间的距离约 6mm , 在 10^{-2} — 10^{-3}torr 氩气氛下溅射, 速率为每分钟 $50\text{\AA}$ 。

经电子衍射证明, 样品是非晶态结构的。用 α 质子背散射技术分析, 样品组分为 $\text{Tb}_{33}\text{Fe}_{67}$, 膜内氧含量 $\lesssim 1\%$, 并且组分随深度分布基本上是均匀的。

用于电阻测量的样品是用预先光刻好电极的微晶玻璃作衬底, 制得 $5 \times 20(\text{mm})^2$, 厚度 $\sim 4000\text{\AA}$ 的膜条。电阻测量采用四引线法, 4.2 — 20K 用 Rh-Fe 电阻温度计, 20 — 300K 用 Pt 电阻温度计。

用于穆斯堡尔谱测量的样品是用云母片作衬底, 为使样品有足够的铁含量, 将制得的厚度 $\sim 8000\text{\AA}$ 的薄膜四层迭起, 膜厚共约 $3\mu\text{m}$ 。

三、实验结果

1. 非晶态 TbFe_2 薄膜样品的饱和磁化强度测量结果如图 1 所示, $T_c \sim 400\text{K}$, 在居里温度附近有很长的尾巴效应, 这是非晶态材料中常见的一种弥散效应。

2. 非晶态 TbFe_2 薄膜样品的电阻随温度变化关系如图 2 所示。电阻率 ρ 约 $200\mu\Omega\cdot\text{cm}$, 电阻极小值温度 $T_{\min}$ 约 360K , 在 $T < T_{\min}$ 的温度范围内, $d\rho/dT < 0$, 为负温度系数。电阻随温度的相对变化率较大, $|\rho(4.2) - \rho(T_{\min})|/\rho(T_{\min}) \sim 14\%$, 电阻随温度变化近似于线性, 即 $\rho \propto -T$ 。

3. 非晶态 TbFe_2 薄膜样品的室温可解析的穆斯堡尔谱如图 3 所示。对一般的铁磁体, 解谱时通常要同时考虑四极矩和同质异能位移, 但对非晶态样品, 由于结构上的涨落

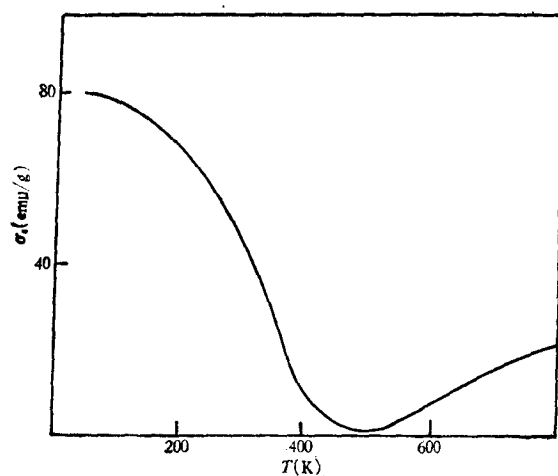
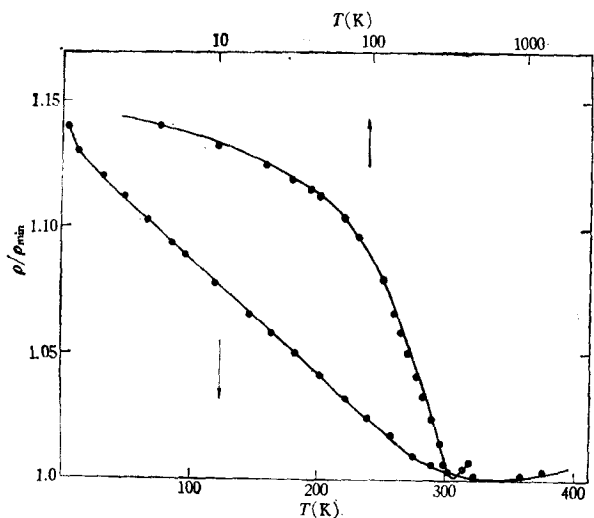
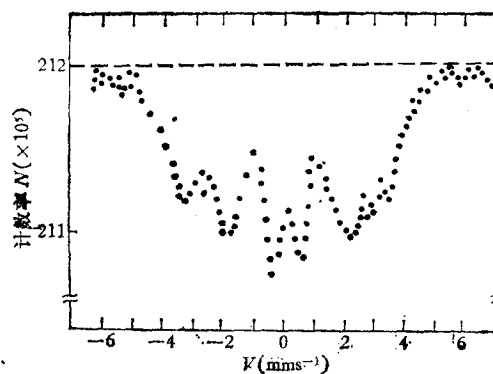
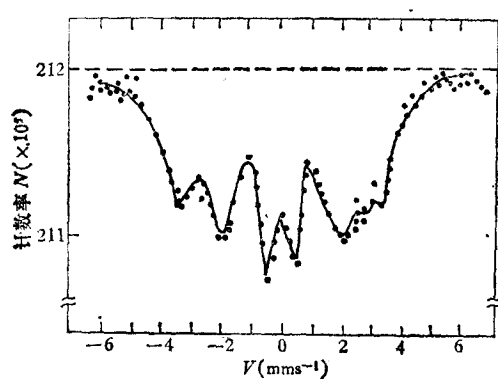
图1 非晶态 TbFe_2 薄膜的 $\sigma_0(T)$ 曲线 ($H = 12000\text{Oe}$)图2 非晶态 TbFe_2 薄膜的 $\rho/\rho_{\min}$ 与 T 和 $\rho/\rho_{\min}$ 与 $\ln T$ 的关系曲线

图3

和有序,使晶场梯度的主轴和超精细场之间的取向也完全是混乱无序的,因此可以认为仅有内场分布 $P(H)$,不考虑四极矩和同质异能位移的分布,四极矩的作用只是使谱线加宽,同质异能位移主要形成谱线的线性畸变.解谱中选用实验测得的 $\alpha\text{-Fe}$ 的穆斯堡尔谱为标准,以它的内场为最大内场 (330kOe),六峰的强度比为 $3:x:1:1:x:3$,谱线宽度取为 9.3kOe ,将内场分为 40 等分,其间隔 ΔH 约为 8kOe .

用 Hesse 和 Rubartsch 提出的与模型无关的解重叠谱方法解谱,得到的谱线拟合情况与内场分布 $P(H)$,如图 4(a), (b) 所示. 用 Window 提出的傅里叶方法解谱,得到的谱线拟合情况与内场分布 $P(H)$,如图 5(a), (b) 所示. 两种不同解谱方法得到的超精细场分布 $P(H)$ 非常相近,并且六峰的强度比都为 $3:2:1:1:2:3$ ^[11].

4. 非晶态 TbFe_2 薄膜样品在 400K 的穆斯堡尔谱如图 6 所示(横坐标为速度),具有



(a) 用 Hesse 方法解得的谱与实验谱的拟合情况

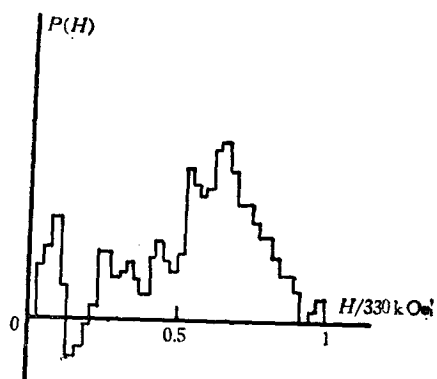
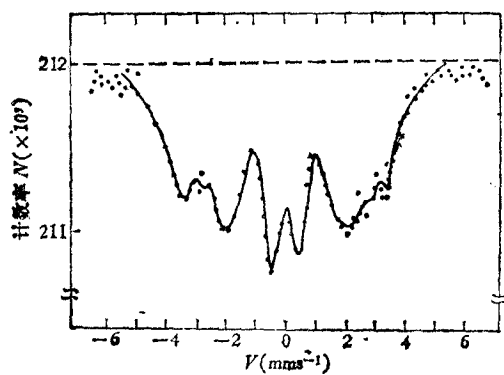
(b) 用 Hesse 方法求得的内场分布
其光滑因子 $r = 1$, 拟合偏差 $x = 2$

图 4



(a) 用 Window 方法解得的谱与实验谱的拟合情况

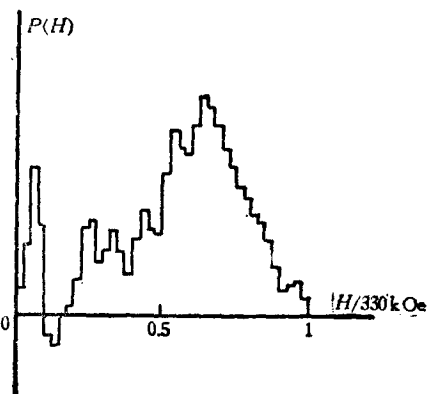
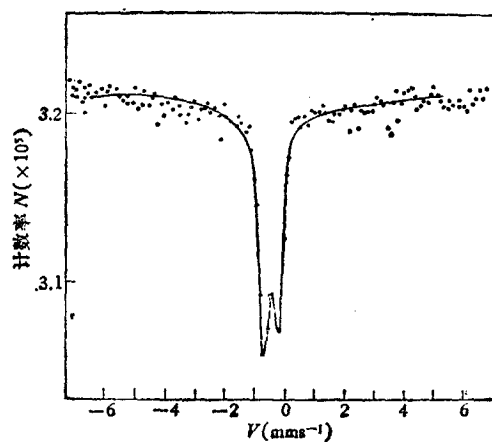
(b) 用 Window 方法求得的内场分布
其光滑因子 $m = 22$, 拟合偏差 $x = 2$

图 5

图 6 非晶态 TbFe_2 薄膜 400K 的穆斯堡尔谱

清晰的不对称的四极劈裂谱。

四、讨 论

1. 从非晶态 TbFe_2 合金室温穆斯堡尔谱的解谱可知, 在非晶态 TbFe_2 中, 铁的内场具有不止一组的很宽分布, 最为明显的是 $H = 210\text{kOe}$ 和 $H = 25\text{kOe}$ 两组分布, 而且分布宽度达 45%。对比 4.2K 时非晶态 DyCo_3 中 Dy 的内场分布宽度仅 1%^[1], 表明铁的 3d 电子壳层受近邻原子强烈影响。

2. 只有在六峰强度比为 3:2:1:1:2:3 时, 计算符合才比较好^[11], 说明了铁核的磁矩方向是无规排列的, 是受 Tb 离子产生的强局域各向异性场的作用, 这个结果与 Harris 提出的模型相符。

3. 非晶态 TbFe_2 合金的 400K 穆斯堡尔谱具有清晰的不对称的四极劈裂谱, 说明非晶态 TbFe_2 合金中, 铁离子晶位不是立方对称的, 具有确定的近程有序, 但其近程序不是单一的。

4. 若和 $\alpha\text{-Fe}$ 的超精细场 $H_{\text{hf}} = 330\text{kOe}$ 相比, 实验结果表明, 在非晶态 TbFe_2 合金中, 近邻离子自旋之间的耦合大大减弱了, 并且有相当一部分铁离子处于很弱的内场作用下。也就是说, 对应 $H = 210\text{kOe}$ 的一组分布(约占总数的 90%)的铁离子, 表现为铁磁性; 对应 $H = 25\text{kOe}$ 的一组分布(约占总数的 10%)的铁离子, 表现为顺磁性。这样, 就有可能在磁性离子浓度很高的非晶态铁磁合金中, 存在类 Kondo 型自旋翻转散射机制, 在低温时出现负阻效应, 电阻测量结果证实了这一推断。但 TbFe_2 非晶态合金的低温电阻反常机制究竟是否与 Kondo 效应有关, 还需要深入研究处于弱耦合的这部分铁离子的基本磁性, 以及它与传导电子之间的相互作用和散射机制。

5. 非晶态 TbFe_2 合金中, 铁离子自旋之间的耦合大大减弱, 使其交换作用场有一个很宽的分布, 必然导致 T_c 和 $M_s(0)$ 的下降, 但这仅仅是引起 T_c 和 $M_s(0)$ 下降的一个因素。非晶态 TbFe_2 合金的 T_c 和 $M_s(0)$ 下降除了交换作用场有一个分布外, 还受强局域各向异性场的很大影响, 这正是与 Gubanov 唯象理论的不同点。

6. 从非晶态 TbFe_2 合金的电阻特性可知, 非晶态 TbFe_2 合金的电阻相对变化率是相当大的, 达 14%。而通常的非晶态合金, 如 $\text{Fe}_x\text{Ni}_{100-x}\text{P}_{14}\text{B}_6$ 系列, 电阻相对变化率小于 1%^[13], 最近, Sellmyer^[14] 等测量了很多非晶态合金的电阻特性, 其相对变化率都小于 7%。非晶态 TbFe_2 合金不仅电阻相对变化率最大, 而且与温度的线性关系很好, 很具特色, 可以作为耐辐照低温温度计的新材料, 存在潜在的应用前景。

本工作得到很多同志的热情帮助, 王金玲同志作了磁秤测量, 杨翠英和周玉清同志作了电子衍射, 殷士端同志测量了背散射, 计桂泉和章佩群同志测量了 400K 的穆斯堡尔谱, 谨向他们致以诚挚的谢意。

参 考 文 献

- [1] J. M. D. Coey, J. Chappert, J. P. Rebouillat and T. S. Wang, *Phys. Rev. Lett.*, **36**(1976), 1061.
- [2] P. Chandhari, J. J. Cuomo and R. J. Gambino, *IBM J. Res. Develop.*, **17**(1973), 66.

- [3] D. W. Forester, C. Vittoria, J. Schelleng and P. Lubitz, *J. Appl. Phys.*, **49**(1978), 1966.
- [4] J. J. Rhyne, S. J. Pickart and H. A. Alporir, *Phys. Rev. Lett.*, **29**(1972), 1562.
- [5] A. I. Gubanov, *Fiz. Tverd. Tela*, **2**(1960), 502; *Sov. Phys. Solid State*, **2**(1961), 468.
- [6] R. Harris, M. Plischke and M. J. Zuckermann, *Phys. Rev. Lett.*, **31**(1973), 160.
- [7] D. Sarkar, R. Segnan, E. K. Cornell, E. Callen, R. Harris, M. Plischke and M. J. Zuckermann, *Phys. Rev. Lett.*, **32**(1974), 542.
- [8] D. W. Forester, R. Abbundi, R. Segnan and D. Sweger, 1974 AIP Conf. Proc., **24**(1975), 115.
- [9] J. Hesse and A. Rübartsch, *J. Phys. E*, **7**(1974), 526.
- [10] B. Window, *J. Phys. E*, **4**(1971), 401.
- [11] 蔡延瑞、夏克定、刘联瑞, 自然杂志, **2**(1979), 341.
- [12] T. E. Sharon and C. C. Tsuei, *Phys. Rev. B*, **5**(1972), 1047.
- [13] E. Babić, Ž. Marohnić, J. R. Cooper, A. Hamjić and Rizzuto, *J. de Physique, Coll. C6, Suppl.*, **C6**(1978), 946.
- [14] G. Hadjipanayis, S. C. Cornelison, J. A. Gerber and D. J. Sellmyer, *J. Magnet. Magnet. Mater.*, **21**(1980), 101.

MAGNETIC AND ELECTRONIC PROPERTIES OF TbFe₂ AMORPHOUS FILM

ZHENG DE-JUAN WANG ZHEN-XI ZHANG DIAN-LIN LIN SHU-YUAN

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

LIU LIAN-FAN ZAI YAN-HUANG SHA KE-DING

(*Shanghai Institute of Nuclear Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

We have studied magnetic and electrical properties of TbFe₂ amorphous film prepared by R. F. sputtering. Saturation magnetization $M_s(T)$ (77—800K), electrical resistivity $\rho(T)$ (4.2—400 K) and Mössbauer spectra (18K, 400 K) measurements were made. We obtained the Curie temperature ($T_c \sim 400$ K), temperature of the resistivity minimum ($T_{\min} \sim 360$ K) and the negative temperature coefficient of resistivity. Mössbauer spectra at room temperature were resolved using both of the method of Hesse and that of Window. The hyperfine field distributions obtained by both methods are in good agreement. There are two distributions at $H=210$ kOe and $H=25$ kOe respectively. The first is consistent with ferromagnetism and the second is probably associated with Kondo-type resistance minimum. The Mössbauer effect results indicate that the spin of the iron ion is also subjected to a local anisotropy field of random orientation. This result is consistent with the Harris model.