

Sm-Fe 和 Sm-Co 非晶态合金薄膜的高场热磁效应

方瑞宜 戴道生 饶晓雷 刘尊孝 兰 健 万 虹

(北京大学物理系)

1987年9月14日收到

本文研究了 $\text{Sm}_x\text{T}_{1-x}$ ($T = \text{Fe}, \text{Co}$) 非晶态薄膜的磁化强度 σ 与温度 T 的关系. 发现在磁场 $H = 7\text{T}$ 下, 对 $\text{Sm}_x\text{Co}_{1-x}$ 样品 ($x = 0.46, 0.48, 0.54, 0.65$) 的升温过程测得的 $\sigma(T)$ 曲线上有极大值, 它对应的温度都在 $25\text{--}28\text{K}$ 范围内, 与成分关系不大. 非晶态 $\text{Sm}_x\text{Fe}_{1-x}$ ($x = 0.46, 0.73$) 的结果与之不同, 极大值对应的温度与成分有关. 对上述样品, 还发现在 $T \approx 6\text{K}$ 附近 $\sigma(T)$ 有极小值(和陡变), 在近室温端, 出现 $\sigma(T)$ 下降缓慢的“拖尾巴”现象.

我们认为, Sm-Co 非晶态薄膜表现的高场热磁效应可能起源于 Sm 原子磁矩对磁化的贡献不可忽略, 作用在 Sm 原子上的局域无规各向异性很强; 这种各向异性在 $20\text{--}30\text{K}$ 变化较大. 而 Sm-Fe 薄膜的高场热磁效应可能起源于 Fe 原子磁矩的分散. $\sigma(T)$ 在 6K 附近的极小值(和陡变)及其在室温端变化缓慢的原因, 可能是合金成分的涨落所致.

一、引 言

许多物质呈现热磁效应: 当该物质在零磁场下冷却到低于其磁转变温度后, 在磁场中测其磁化强度与温度的关系 $\sigma(T)$ 时发现, 升温过程测得的 $\sigma(T)$ 曲线上存在极大值, 接着进行降温测量, 在低于此极大值对应的温度, 升降温的 $\sigma(T)$ 曲线不重合, 相应的 σ 值比升温时要大些.

对于不同材料, 产生热磁效应的原因很不相同. 自旋玻璃的热磁效应和磁矩的无规冻结是基于磁性原子之间的 RKKY 作用^[1,2]. 混磁体 (mictomagnet) 发生热磁效应的原因是, 合金中的磁性原子形成原子团处在非磁性的或反铁磁性原子的基质中. 在团内原子之间存在强的交换作用, 使团内原子磁矩取向一致, 但各团的磁矩取向是无规的, 而且存在冻结温度^[3]. 非晶态稀土-过渡金属合金中, 如 Y-Fe 非晶态合金^[4], 由于存在很强的局域无规各向异性, 使 Fe 原子磁矩取向有一定分散, 从而可能具有类自旋玻璃的特性. 另外, 对于晶态 Re-TM₂ 的 Laves 相合金, 其磁化强度也可能具有热磁效应, 如 $\text{Dy}(\text{Fe}_{0.9}\text{M}_{0.1})_2$ 的情况^[5], 作者认为在 $M = \text{B}, \text{Al}, \text{Ga}$ 时, 立方的 Laves 相磁硬化, 表现出热磁效应.

本文基于对 Sm-Co 和 Sm-Fe 非晶态薄膜磁性研究的结果^[6], 进一步报道其高场热磁效应以及在低温和室温端的磁反常的特性.

二、样品的制备与测量

用双源真空蒸镀法制备了 $\text{Sm}_x\text{T}_{1-x}$ ($T = \text{Fe}, \text{Co}$) 非晶态薄膜, 样品的衬底是有机薄膜, 衬底固定在经液氮冷却的底板上, 以便于制成非晶态薄膜. 膜的成分经能谱分析为 $\text{Sm}_x\text{Co}_{1-x}$ $x = 0.46, 0.48, 0.54, 0.65, 0.95$; $\text{Sm}_x\text{Fe}_{1-x}$ $x = 0.46, 0.73$. 所有样品经电子衍射确认均为非晶态.

用超导强磁场提拉法测磁装置, 测量了所有样品的热磁效应: 在零磁场下将样品冷却到 1.5 K, 然后给定一磁场(顺序为 $H = 0.1, 0.3, 0.7, 1.5, 3.0, 7.0 \text{ T}$), 从 1.5 K 升温到 300 K 测其磁化强度 σ 的变化, 接着测量 300 K 到 1.5 K 的变化. 在改变磁场进行另一次测量之前, 必须使样品升温退磁, 再在零场中冷却到 1.5 K. 重复升温降温测量过程, 从而得到一组热磁效应的结果. 另外, 还测量了 $\text{Sm}_{0.54}\text{Co}_{0.46}$ 非晶态薄膜的各向异性随温度的变化, 磁滞迴线, 以及磁化强度的时间效应.

三、结果与分析

1. Sm-Co 非晶态薄膜的热磁效应

图 1 给出了 $\text{Sm}_{0.46}\text{Co}_{0.54}$ 非晶态薄膜在不同磁场下磁化强度 σ 与温度 T 的关系, 箭头标明升温降温过程. 可以看到, 随着外磁场增大, 升温过程测得的 $\sigma(T)$ 曲线的极大值向低温方向移动, 在低温端的升降温过程的 σ 的差值减小. 但在 $H = 7 \text{ T}$ 时, 差值仍不为零, 表现出高场热磁效应. 这里所加的磁场比文献 [1—5] 中报道的高得多.

图 2 给出了一组 $\text{Sm}_x\text{Co}_{1-x}$ ($x = 0.46, 0.48, 0.54, 0.65, 0.95$) 非晶态合金薄膜的 $\sigma(T)$ 曲线. 在 $H = 7 \text{ T}$ 时, 除 $x = 0.95$ 的样品以外, 都表现出明显的热磁效应. 值得注意的是, 升降温过程中 σ 的分歧点的温度都集中在 25—28 K 范围内, 看来成分对此影响不大. 这与 Sm-Fe 合金的情况不同.

在高场下具有热磁效应的原因可能是, 散铁磁性的 $\text{Sm}_x\text{Co}_{1-x}$ 非晶态合金, 当 $x \geq 0.46$, 样品的磁性已比较弱, 每个合金分子的磁矩 $\leq 0.2 \mu_B$, 由图 3¹⁾ 可以估算得相应的 Co 原子磁矩 $\approx 0.3 \mu_B$, 这时 Sm 原子的磁矩 ($\approx 0.1 \mu_B$) 不可忽略. 在高场 ($H = 7 \text{ T}$) 下, Co 磁矩已达饱和磁化. Sm 原子磁矩间的分散角减小, 由于强的单离子局域各向异性, 所以仍远未饱和磁化. 但随着温度升高, 各向异性迅速下降(如图 4 所示), 热效应可能有助于转动磁化过程的进行, 使 σ 增加. 在降温过程中, 由于磁场的作用, Sm 原子磁矩沿磁场方向取向以及与磁场的交角取小于 $\pi/2$ 的机率增加, 因而表现出高场热磁效应.

我们由第一象限的退磁曲线($H_{\max} = 7 \text{ T}$) 左方的面积估计了有效各向异性值 K_u'' . 因 $H_{\max}$ 只有 7 T, 远未使样品饱和磁化, 所以得出的 K_u'' 值比实际情况小得多. 图 4 示出了 K_u'' 与温度 T 的关系. 由图 4 知, 在 20—30 K 之间 K_u'' 变化较大, 这可以定性地说明

1) 张慧云, 北京大学物理系学生毕业论文.

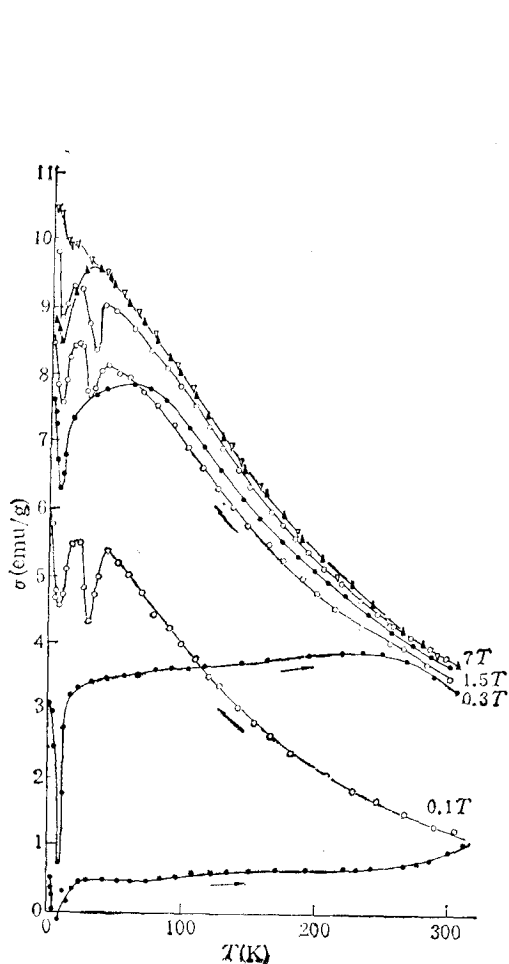


图1 不同磁场下 $\text{Sm}_{0.48}\text{Co}_{0.52}$ 非晶态薄膜的 σ - T 曲线 $T_c = 170\text{K}$; ●和 ▲表示升温过程测量结果; ○和 ▽表示降温过程测量结果

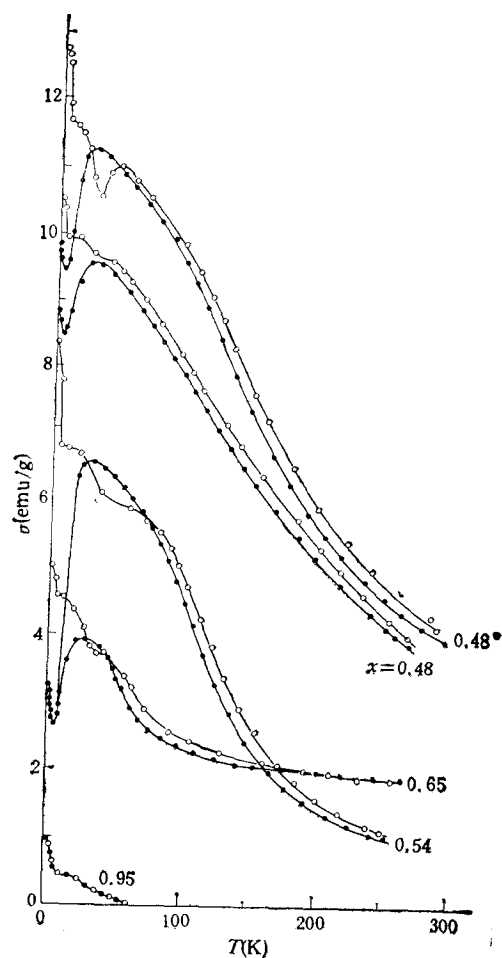


图2 $\text{Sm}_x\text{Co}_{1-x}$ 非晶态薄膜的 σ - T 曲线 ...为升温; ×××为降温; $H = 7\text{T}$; *为成分经过修正后的另一个样品

σ - T 曲线上的极大值出现在此温区的原因。由于只是 Sm 原子的特性决定了这一极值的成因,所以在 Sm 含量较多时存在高场热磁效应,而且 σ 极大的温度受成分的影响不大。

非晶态稀土-过渡金属合金的居里温度较难测定,因为 σ - T 曲线在 T_c 以上仍存在较大的高场磁化率。用 Arrott 作图法或 σ^2 - T 外推法等方法也不易测出 T_c 值。在本文中,我们用拐点 (kink point) 法测出了四个 Sm-Co 非晶态薄膜的居里点,并示于图 5。

此外,图 1 示出的 $\sigma(T)$ 的升降温曲线在 6 K 附近出现极小值(和陡变),在近室温区有 $\sigma(T)$ 下降缓慢的“拖尾巴”现象,其它成分的 Sm-Co 非晶态样品也有同样的情形,如图 2 所示。对于这二现象的解释,我们认为很可能是,因为非晶态样品的成分有涨落分布,即除了大量“正常”成分的 Sm-Co 合金以外,可有少量富 Sm 的 Sm-Co 合金和富 Co 的 Sm-Co 合金。富 Sm 的 Sm-Co 合金在 10 K 附近发生由散铁磁性转变为散反

铁磁性的磁相变^[7]. 以 $\text{Sm}_{0.48}\text{Co}_{0.52}$ 非晶态薄膜为例, 在富 Sm 的 Sm-Co 合金中, Co 原子磁矩为零, 由 Sm 原子的磁矩和它的分散角 φ_0 , 可以估算得相变前后合金的磁矩最大

可减小 2.71 emu/g. 在 $H = 7\text{ T}$ 的情形下: σ 下降约 0.6 emu/g, 由此知大约有 20% 的 Sm 发生这一相变. 图 6 示意地解释了相变前后 $\sigma(T)$ 发生陡变的原因. 当 Sm-Co 合金由 1.5 K 升温时, 富 Sm 的 Sm-Co 合金在 10 K 附近由散铁磁性转变为散反铁磁性, 磁化强度 σ 急剧下降, 如图 6 中曲线 1 所示. “正常”成分的 Sm-Co 合金的 σ 随升温而增加, 如图 6 中曲线 2 所示. 两者之和如曲线 3 所示, 即在 6 K 附近有 $\sigma(T)$ 的极小值. 对降温过程, 富 Sm 的 Sm-Co 合金的 σ 在 $T \approx 10\text{ K}$ 由于磁转变 σ 陡增. “正常”成分的 Sm-Co 合金, 在这温区内 σ 基本不变. 两者之和得到 $\sigma(T)$ 的陡增.

对于富 Co 的 Sm-Co 合金, 它的居里点远高于 300 K, 因此可以认为在 300 K 以下, 磁矩基本不变. Co 磁矩为 $1.5 \mu_B$, 合金的磁矩为 80 emu/g. 由图 1 知, 在 300 K

附近, $\sigma \approx 3\text{ emu/g}$, 所以约有 4% 的 Co 组成富 Co 的 Sm-Co 合金, 形成在室温端 $\sigma(T)$ 下降缓慢的“拖尾巴”现象.

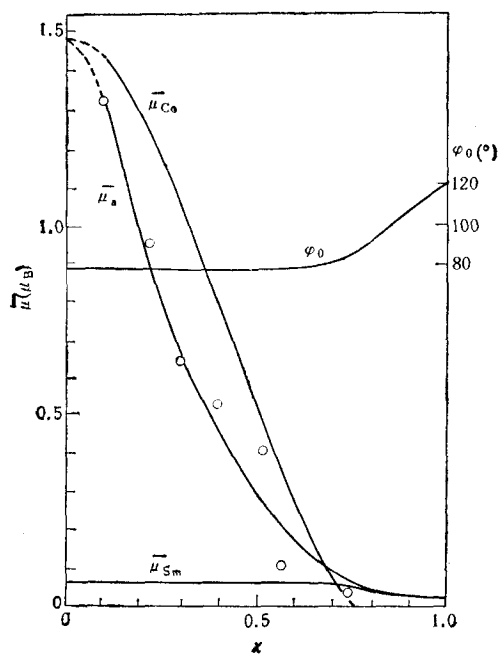


图 3 $\text{Sm}_x\text{Co}_{1-x}$ 非晶态合金的平均磁矩 $\bar{\mu}_a$, $\bar{\mu}_{\text{Co}}$, $\bar{\mu}_{\text{Sm}}$ 以及 Sm 的散磁张角 φ_0 同成分 x 的关系

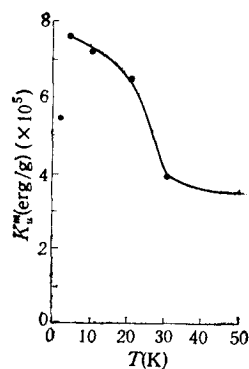


图 4 $\text{Sm}_{0.44}\text{Co}_{0.46}$ 非晶态薄膜的有效各向异性 K_u^{eff} 与 T 的关系

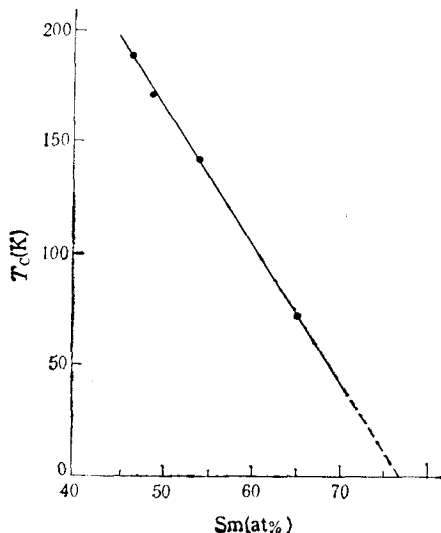


图 5 $\text{Sm}_x\text{Co}_{1-x}$ 非晶态薄膜的 T_C 与成分 x 的关系

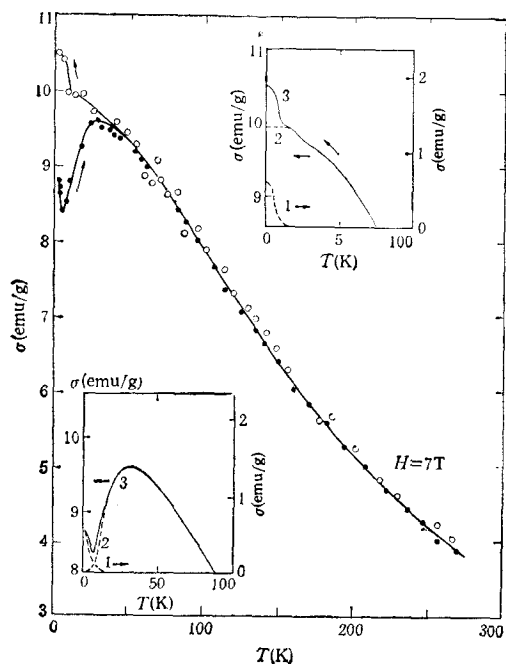


图6 $\text{Sm}_{0.44}\text{Co}_{0.56}$ 非晶态薄膜低温下 σ 发生陡变的示意图 曲线1为富 Sm 合金的 $\sigma(T)$; 曲线2为“正常”成分的 $\sigma(T)$; 曲线3为两者之和

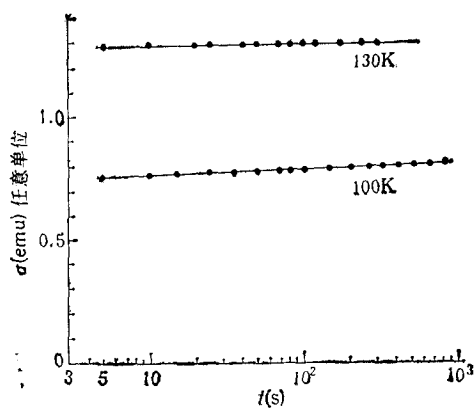


图7 $\text{Sm}_{0.44}\text{Co}_{0.56}$ 非晶态薄膜的磁化强度 σ 的时间效应 $H=0.2\text{T}$; $T_c=147\text{K}$

此外,我们还测量了 $\text{Sm}_{0.54}\text{Co}_{0.46}$ 样品的 σ 的时间效应和磁滞迴线相对于原点的位移,示于图7和图8.

Zarek^[3] 指出混磁 (mictomagnetic) 合金往往具有热磁效应,磁化强度的时间效应和磁滞迴线相对于原点的位移等特性. 虽然, Sm-Co 非晶态合金在低温下也表现出类

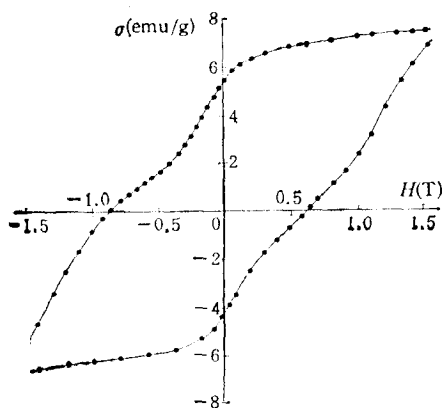


图8 $\text{Sm}_{0.54}\text{Co}_{0.46}$ 非晶态薄膜的磁滞迴线 $H_{\max}=1.5\text{T}$; $T=50\text{K}$

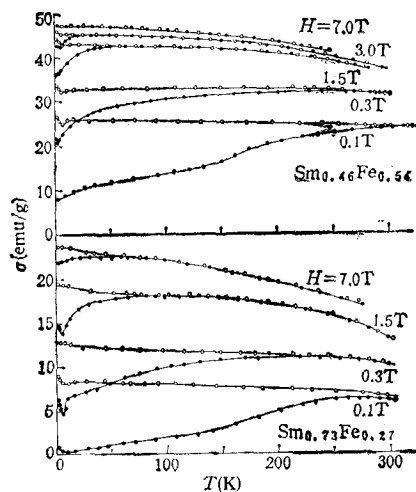


图9 不同磁场下 Sm-Fe 非晶态薄膜的 σ - T 曲线 ●和○分别表示升温 and 降温过程测量结果

似的现象,但究其原因,是由于在低温下它的 K'' 很强,并随温度升高而迅速下降,而不是文献 [1—3] 中指出的 RKKY 的作用所致.

2. Sm-Fe 非晶态薄膜的热磁效应

图 9 给出了 $\text{Sm}_{0.46}\text{Fe}_{0.54}$ 和 $\text{Sm}_{0.73}\text{Fe}_{0.27}$ 非晶态薄膜在不同磁场下的 σ - T 曲线.由图 9 可知,Sm 含量高的样品在 $H = 7\text{T}$ 时出现热磁效应,Sm 含量低的则不出现.如 Sm 含量更低(如 $x = 0.34$),则在 $H = 3\text{T}$ 时就不表现出热磁效应.另外还可以看到,随着磁场增大,磁化强度增加得比 Sm-Co 样品要快些,而且在 $H = 7\text{T}$ 下,磁化强度的极大值对应的温度与 Sm 含量有关.

由图 9 中的 σ 值可以估计出,在 $H = 7\text{T}$ 下,Fe 原子的贡献占绝对优势,分别为 $0.85 \mu_B$ 和 $0.53 \mu_B$,并且随磁场增大, σ 仍有增加,这表明 Fe 原子磁矩是分散的.这种现象与 Y-Fe 非晶态合金的特性有些类似,只是高场磁化率小得多.由此可以认为, $\text{Sm}_x\text{Fe}_{1-x}$ ($x \geq 0.46$) 非晶态合金的高场热磁效应的原因主要是,在这些合金中,Sm 原子的磁矩可以忽略,对磁化有贡献的是磁矩分散的 Fe 原子. Fe 原子磁矩分散角的大小和转动磁化的难易程度与 Sm 的含量有关,Sm 含量越高,Fe 磁矩越分散,越不易磁化到饱和,所以磁化强度极大值对应的温度与磁场和 Sm 含量都有关.

四、小 结

对于稀土-过渡金属非晶态合金,磁性原子磁矩无规取向的“冻结”是由于单离子局域各向异性在低温下随温度降低而迅速增大所致.含 Sm 量较高的 Sm-Co 和 Sm-Fe 非晶态合金高场热磁效应形成的机制主要是: 1) 这类非晶态合金的无规局域各向异性很强,取向分散的原子磁矩(Sm-Co 合金中主要是 Sm, Sm-Fe 合金中主要是 Fe) 在高场(例如 $H = 7\text{T}$) 下仍未饱和磁化; 2) 在低温下,合金的无规局域各向异性随温度升高而迅速下降,使热运动有可能帮助转动磁化的进行(即“解冻”),从而形成高场热磁效应.

- [1] D. Fiorani, J. Tholence and J. L. Dormann, *J. Phys. C*, 19(1986), 5495.
- [2] K. Moorjani and J. M. D. Coey, *Magnetic Glasses*, Ch. 7, Elsevier, (1984).
- [3] W. Zarek, *J. Less Common Metals*, 87(1982), 185.
- [4] J. M. D. Coey, D. Givord, A. Lienard and J. P. Rebouillat, *J. Phys. F*, 11(1981), 2707.
- [5] 钟文定、兰 健、刘尊孝,第六届全国磁学会议论文集,武昌,(1987), 21 页.
- [6] 戴道生等,物理学报, 35(1986), 1502.
- [7] S. Legvold, in "Ferromagnetic Materials", Vol. 1, p. 256, Ed. E. P. Wohlfarth, North-Holland, Amsterdam, (1980).

THERMOMAGNETIC EFFECT OF THE Sm-T (T=Fe, Co) AMORPHOUS THIN FILMS IN HIGH FIELDS

FANG RUI-YI DAI DAO-SHENG RAO XIAO-LEI LIU ZUN-XIAO LAN JIAN WAN HONG

(Department of Physics, Peking University)

ABSTRACT

The temperature dependence of magnetization at $H=0.1\text{--}7\text{ T}$ for amorphous $\text{Sm}_x\text{T}_{1-x}$ (T=Fe, Co) thin films was investigated in the range of 1.5 to 300 K. It was found that there was a maximum magnetization in the $\sigma(T)$ curves, measured in the temperature rising process, for the $\text{Sm}_x\text{Co}_{1-x}$ thin films ($x=0.46, 0.48, 0.54, 0.65$). For the Sm-Co alloys, the temperatures, corresponding to $\sigma_{\max}$, are about 25—28 K and are independent of the composition. But the Sm-Fe amorphous alloys are different from the Sm-Co alloys, in the former the temperature corresponding to $\sigma_{\max}$ depends on both the field and the composition of the alloys. In addition, it was found that there was a $\sigma_{\min}$ (or a repaid variation) at $T\approx 6\text{ K}$, and $\sigma(T)$ decreased very slowly near room temperature.

It was suggested that the thermomagnetic effect for the Sm-Co thin films at high field may be caused by the contribution of Sm moment to the magnetization, though the magnetic moment of Sm atoms is very small ($\approx 0.1\mu_B$), and the random local anisotropy is strong at low temperatures and changes significantly between 20—30 K. But the thermomagnetic effect of the Sm-Fe amorphous alloys may be caused by the dispersion of the Fe moments. The $\sigma_{\min}$ at $T\approx 6\text{ K}$ and the slow decrease of $\sigma(T)$ near room temperature may be caused by fluctuation of composition in these alloys.