

Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})₂ 单晶体的宏观量子效应*

钟文定 陈海英 刘尊孝 吴建华 李国忠

(北京大学物理系, 北京 100871)

(1999 年 7 月 26 日收到)

测量了 Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})₂ 单晶体在 [100], [110] 和 [111] 方向上的退磁曲线、内禀矫顽力和磁黏滞性系数随温度的变化. 认为退磁曲线出现台阶和大跳跃、内禀矫顽力随温度变化存在峰值、磁黏滞性系数与温度无关等都是畴壁隧穿能垒的宏观量子效应的反映. 实验上得出由经典热激活到量子隧穿的交界温度约为 5.5 K.

PACC: 7560; 7560L; 7590

1 引 言

近 10 年来, 磁性宏观量子效应吸引了许多理论和实验工作者的注意, 已发表不少有价值的论文(见文献[1]内的引文). 可是, 由于对低温下磁黏滞性系数不随温度变化的实验现象是否就是磁性的宏观量子效应的反映有不同看法, 导致对磁性宏观量子现象的怀疑. 所以如何从实验上证实磁性宏观量子效应, 便成为迫切的任务(1986—1988 年理论上已证明了磁性宏观量子效应). 1996 年 Friedman 等和 Hernandez 等分别发表了 Mn₁₂-Ac (12 核锰醋酸配合物 Mn₁₂O₁₂(CH₃COO)₁₆(H₂O)₄·2CH₃COOH·4H₂O) 在 1.7—3.0 K 下的磁滞回线和磁化曲线, 磁场每间隔约为 4 × 10⁵ A/m, 上述曲线便明显出现台阶^[2], 完全证实了磁性宏观量子效应的存在. 曲线上的台阶称为量子台阶, 这类曲线称为量子磁化曲线或量子磁滞回线. 从此对磁性宏观量子效应的存在已无疑义, 有关工作又深入了一步^[3].

我们曾报道了 Dy(Fe, Ga)₂ 多晶的宏观量子隧道效应^[4], 指出低温下(小于 4 K)退磁曲线出现台阶和大跳跃、矫顽力随温度变化有一峰值、磁黏滞性系数与温度无关等现象都是磁性宏观量子效应的反映. 本文研究 Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})₂ 单晶体在不同晶轴方向上的退磁曲线、矫顽力和磁黏滞性系数随温度的变化. 发现这些变化同样具有反映磁性宏观量子效应的特征, 但是晶粒状态(单晶或多晶)、晶轴方向对畴壁脱离钉扎的宏观量子效应影响不大. 这些结果尚未见报道.

2 样品制备与测量

用电弧炉在氩气氛保护下将原料炼成熔锭, 然后用悬浮炉拉单晶法自熔锭中制出

* 国家自然科学基金(批准号: 19674002)资助的课题.

$\phi 6-8$ mm, 长度为 20—30 mm 的单晶体, 经 X 射线劳埃法确认后, 在单晶体上分别沿 [100], [110] 和 [111] 方向切割, 制成 $\phi 1.0-1.5$ mm, 长度为 5—6 mm 的圆柱体样品, 其圆柱轴分别与上述三个方向平行.

磁性测量用低温超导强磁场提拉法装置. 不同温度下的内禀矫顽力 $H_{cm}(T)$, 是在该温度下最大外磁场为 5.6×10^6 A/m 时的退磁曲线上确定的. 磁黏滞性的测量, 是先将样品冷却至预定温度和正向饱和磁化, 然后将磁场减小并改变方向(避免振荡和反冲)至某一确定值 H_1 , 在 H_1 下记录比磁化强度 σ 随时间 t 的变化, 每隔 10 s 记录一次, 总时间达 10^3 s 以上.

3 实验结果及分析

Dy(Fe, Al)₂ 化合物中, Al 对 Fe 的置换将产生对畴壁的内禀钉扎, 使磁化和反磁化过程显示畴壁钉扎和脱离钉扎的特征^[5]. 这种特征受温度的影响很大, 当温度低于某一值 T_c 时, 退磁曲线出现台阶和/或大跳跃; 当 $T \geq T_c$ 时, 退磁曲线是平滑的曲线, 没有台阶和大跳跃. 图 1 为 H 与 [100] 方向平行时, Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})₂ 单晶在 1.5—30 K 下的退磁曲线, 其 $T_{cr}^{[100]} = 5.5$ K. 若 H 分别与 [110] 方向和 [111] 方向平行, 其结果与 [100] 方向平行相同, 即 $T_{cr}^{[110]}$ 和 $T_{cr}^{[111]}$ 都为 5.5 K. 我们认为, 退磁曲线形状在 T_c 前后的差异是不同范畴(经典和量子)的反磁化机理造成的. 当 $T \geq T_c$ 时, 畴壁受经典的热激活脱离钉扎, 由于热激活的能量连续改变, 畴壁便能脱离钉扎而连续位移, 使退磁曲线表现为平滑的曲线. 当 $T < T_c$ 时, 畴壁脱离钉扎是通过量子的隧道效应完成的, 由于能级是不连续的, 畴壁停止移动和/或共振式移动, 便导致退磁曲线出现台阶和/或大跳跃.

图 2 为 Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})₂ 单晶体的内禀矫顽力随温度变化的 $H_{cm}(T)$ 曲线. 由图 2 可见, 当 T 自 1.5 K 升至 5.5 K 时, H_{cm} 逐渐增大至一峰值, 此后 H_{cm} 便随 T 的升高而下降. 这种变化趋势不但在外磁场分别平行于 [100], [110] 和 [111] 方向时完全相同, 而且在 Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})₂ 的多晶样品中也很相似, 只是多晶体的 H_{cm} 峰值相应的温度(约为 3 K)比单晶体峰值相应的温度(约为 5.5 K)略低而已. $H_{cm}(T)$ 随 T 变化的两种相反的趋势也是两个范畴(量子 and 经典)的反磁化机理不同造成的. 当 $T \geq 5.5$ K 时, 反磁化机理是畴壁受经典的热激活而越过能垒, 其概率为^[6]

$$P_{ia} = \omega_0 \exp[-E(H)/k_B T], \quad (1)$$

式中 ω_0 为尝试频率(attempt frequency), $E(H)$ 为能垒, k_B 为 Boltzmann 常量, T 为绝对温度. 无论畴壁移动或磁化矢量转向, $E(H)$ 的形式都可表示为^[6,7]

$$E(H) = E_0(1 - H/H_c^0)^\alpha, \quad (2)$$

式中 E_0 为未加磁场时的能垒, H_c^0 是 0 K 时的 H_c , α 为常数, 随体系改变($\alpha = 3/2$ 表示刚性畴壁, $\alpha = 2$ 表示单畴). 当 $T < 5.5$ K 时, 反磁化机理是畴壁通过量子的隧道效应而隧穿能垒, 其概率为^[8]

$$P_{qt} = \omega_a \exp(-B), \quad (3)$$

式中 ω_a 为指数前因子, 又称尝试频率, B 为 WKB 指数. 定义畴壁由热激活向量子隧穿过渡的温度为交界温度 (crossover temperature) T_{cr} , 则由(1)和(3)式热激活和量子的反磁化概率相等得到

$$T_{cr} = E(H)/k_B B. \quad (4)$$

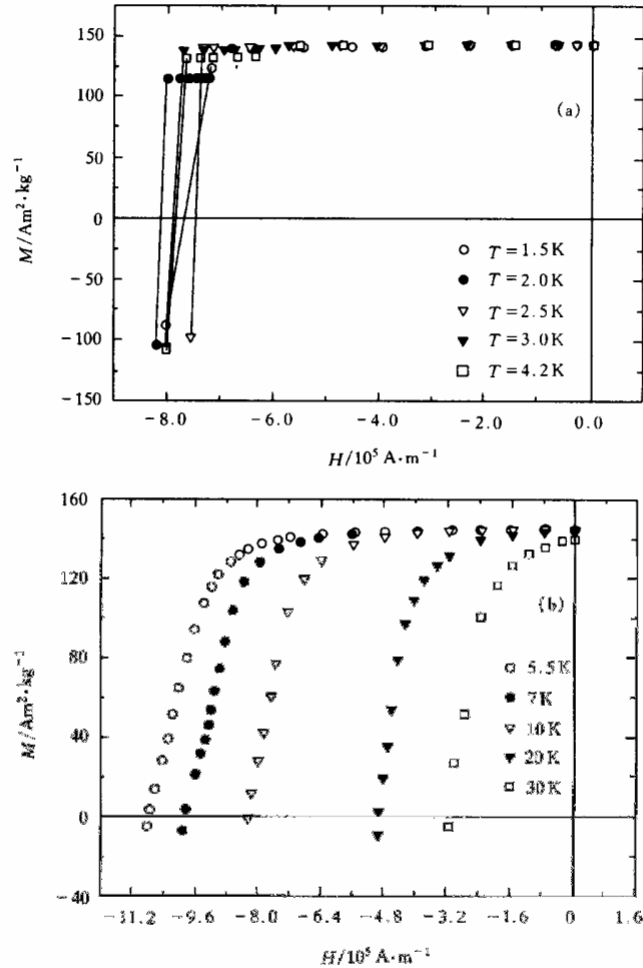


图1 $Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})_2$ 单晶体在不同温度下的退磁曲线($H // [100]$ 方向)
(a)为 1.5—4.2 K, (b)为 5.5—30 K

由(1)—(4)式得到

$$H = H_c^0 \left[1 - \left(\frac{k_B T}{E_0} \ln \frac{\omega_0}{P_{qt}} \right)^{1/\alpha} \right] \quad T \geq T_{cr} \quad (5a)$$

和

$$H = H_c^0 \left[1 - \left(\frac{k_B T_{cr}}{E_0} \ln \frac{\omega_a}{P_{qt}} \right)^{1/\alpha} \right] \quad T < T_{cr}. \quad (5b)$$

(5a)和(5b)式中的 H 就是反磁化时畴壁或磁化矢量不可逆移动或转向时的磁场,因此也就是内禀矫顽力 H_{cm} ,这在文献中已有类似报道^[7,9]. (5a)式适用于经典热激活, (5b)式适用于量子隧道效应.

最近寇谏鹏等^[10]用场论中的周期瞬子方法,从理论上研究了介观磁系统的亚稳态由量子隧穿到经典热激活的过渡问题. 计算了瞬子频率的平方 ω^2 随温度的变化,如图 3 所

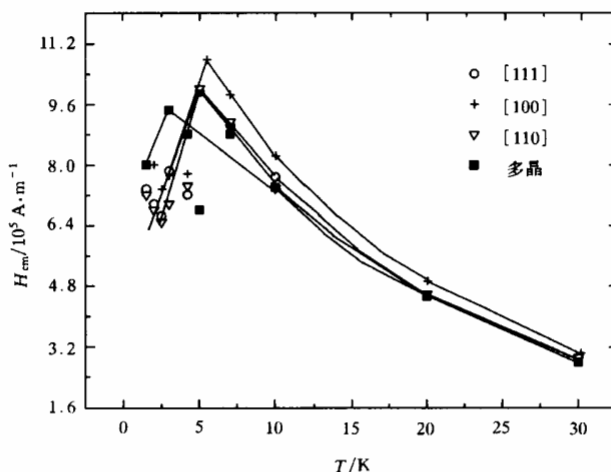


图 2 Dy($\text{Fe}_{0.8}\text{Al}_{0.2}$)₂ 单晶体在[100], [110]和[111]方向上的内禀矫顽力 H_{cm} 随温度 T 的变化. 图中还比较了多晶的情况

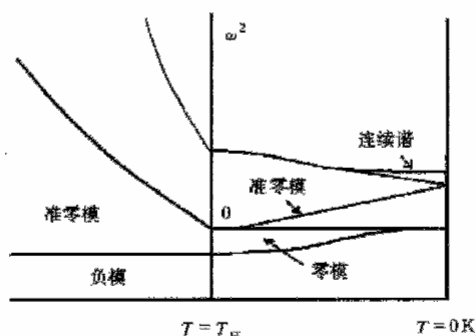


图 3 双势阱模型中,不同模式的瞬子频率平方 ω^2 随温度 T 的演变(取自文献^[10])

示. 由于 ω^2 与热激活概率 P_{th} 或量子隧穿概率 P_{qt} 成正比, 所以从图 3 可见, 无论采取何种模式, $\omega^2(T)$ 曲线都在 $T = T_{cr}$ 处发生转折, 亦即 P_{th} 与 P_{qt} 随 T 的变化在 T_{cr} 处出现突变, 即当 $T > T_{cr}$ 时, P_{th} 随 T 升高而增大(负模除外); 当 $T < T_{cr}$ 时, P_{qt} 却随 T 的下降而增大(连续谱和零模除外). 与(5)式联系起来考虑便得出: $T > T_{cr}$ 时, H_{cm} 的绝对值随 T 升高而减小; $T < T_{cr}$ 时, H_{cm} 的绝对值随 T 下降而减小. 这样, 便从理论上证明了图 2 的

实验结果,确实是反映了经典和量子两种范畴的反磁化机理.若从另一角度考虑,把 H_{cm} 的大小看成是磁状态改变难易的尺度,则 P_{ta} 或 P_{qt} 越大, H_{cm} 越小;反之, P_{ta} 或 P_{qt} 越小, H_{cm} 越大,说明图 2 的实验结果也反映了经典和量子的反磁化机理.

假定比磁化强度 σ 随时间 t 的变化遵守对数律^[4]

$$\sigma = C - S \ln t, \quad (6)$$

式中 C 为常量.则磁黏滞性系数 $S \equiv d\sigma/d \ln t$ 随温度的变化,可区分反磁化机理是量子隧穿还是经典热激活的范畴^[11].若 S 随 T 的变化很小或出现平台,则表明在此温度范围内是量子隧穿;若 S 随 T 的升高而线性增大,则说明在此温度范围内是经典热激活.图 4 为 $Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})_2$ 单晶体的 $S(T)$ 曲线.由图 4 可见, $H//[100]$ 方向和 $H//[111]$ 方向, $S(T)$ 的形状都基本一样.这说明 $T \geq T_{cr} \approx 5.5$ K 时, $S(T)$ 线性增大,是经典的热激活; $T < T_{cr} \approx 5.5$ K 时, $S(T)$ 出现平台,是量子隧穿.图 4 还示出 $Dy(Fe_{0.75}Al_{0.25})_2$ 多晶的 $S(T)$ 曲线,形状与单晶相似,只是 T_{cr} 略低而已.

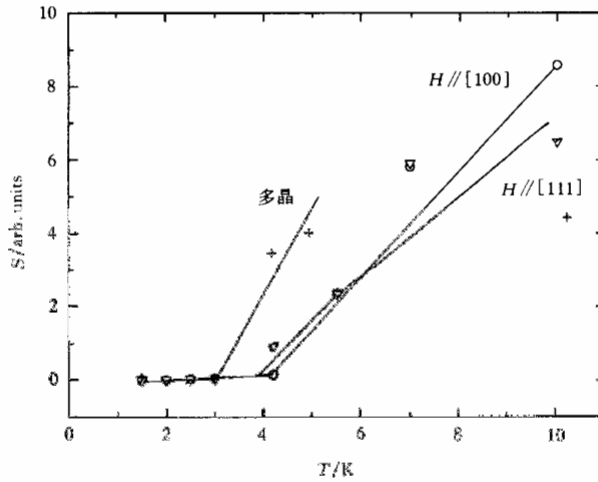


图 4 $Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})_2$ 单晶体在 $[100]$ 和 $[111]$ 方向上的磁黏滞性系数 S 随温度 T 的变化.图中列出了多晶的曲线.

4 结 论

从 $Dy(Fe_{0.8}Al_{0.2})_2$ 单晶和多晶的磁性随温度变化的研究中得出如下结论:

- 1) 退磁曲线的形状在 $T < T_{cr}$ 时出现平台和大跳跃,在 $T \geq T_{cr}$ 时为连续的平滑曲线.
- 2) 内禀矫顽力随温度的变化,在 T_{cr} 处出现峰值.
- 3) 磁黏滞性系数随温度的变化,在 T_{cr} 处出现转折: $T < T_{cr}$ 为平台, $T \geq T_{cr}$ 为线性增大.
- 4) 上述特征在单晶体的 $[100]$, $[110]$ 和 $[111]$ 方向上测量时是相同的,在多晶体上也

是相似的. 这些特征是畴壁隧穿能垒的宏观量子效应或越过能垒的经典热激活的反映.

5) T_{cr} 为反磁化机理由畴壁的经典热激活到量子隧穿的交界温度, 其值约为 5.5 K.

感谢王敬华博士提供样品.

- [1] 钟文定, 物理, **25**(1996), 37 [W. D. Zhong, *Wuli*, **25**(1996), 37(in Chinese)].
- [2] J. R. Friedman, M. P. Sarachik, J. Tejada, R. Ziolo, *Phys. Rev. Lett.*, **76**(1996), 3830; J. M. Hernandez, X. X. Zhang, F. Luis, J. Bartolome, J. Tejada, R. Ziolo, *Europhys. Lett.*, **35**(1996), 301.
- [3] A. Caneschi, T. Ohm, C. Paulsen, D. Rovai, C. Sangregorio, R. Sessoli, *J. Magn. Magn. Mater.*, **177—181**(1998), 1330; S. P. Kou, J. Q. Liang, Y. B. Zhang, X. B. Wang, F. C. Pu, *Phys. Rev.*, **B59**(1999), 6309.
- [4] W. D. Zhong, Z. X. Liu, J. Lan, G. Z. Li, Proc. Inter. Symp. Phys. Magn. Mater., Beijing, 1992, p. 30; Proc. Inter. Symp. Phys. Magn. Mater., Seoul, 1995, p. 60; 钟文定、刘尊孝、陈海英、李国忠, 物理学报, **44**(1995), 1516 [W. D. Zhong, Z. X. Liu, H. Y. Chen, G. Z. Li, *Acta Physica Sinica*, **44**(1995), 1516(in Chinese)].
- [5] W. D. Zhong, J. Lan, Z. X. Liu, G. Z. Li, *J. Magn. Magn. Mater.*, **74**(1988) 39; 钟文定、兰健、刘尊孝, 物理学报, **37**(1988), 645 [W. D. Zhong, J. Lan, Z. X. Liu, *Acta Physica Sinica*, **37**(1988), 645(in Chinese)].
- [6] C. Paulsen, L. C. Sampaio, B. Barbara, D. Fruchard, A. Marchand, J. L. Thlence, M. Uehara, *Phys. Lett.*, **161**(1991), 319.
- [7] M. Uehara, B. Barbara, *J. Physique*, **47**(1986), 235; W. Wernsdorfer, K. Hasselbach, D. Mailly, B. Barbara, A. Benoit, L. Thomas, G. Suran, *J. Magn. Magn. Mater.*, **145**(1995), 33.
- [8] E. M. Chudnovsky, L. Gunther, *Phys. Rev. Lett.*, **60**(1988), 661.
- [9] W. Wernsdorfer, E. B. Orozco, K. Hasselbach, A. Benoit, B. Barbara, N. Demoncey, A. Loiseau, H. Pascard, D. Mailly, *Phys. Rev. Lett.*, **78**(1997), 1791.
- [10] S. P. Kou, J. Q. Liang, Y. B. Zhang, X. B. Wang, F. C. Pu, *Phys. Rev.*, **B59**(1999), 6309; 寇颢鹏, 博士学位论文(中国科学院物理研究所, 北京, 1999) [S. P. Kou, Ph. D. Thesis (Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing, 1999)(in Chinese)].
- [11] J. Tejada, X. X. Zhang, E. M. Chudnovsky, *Phys. Rev.*, **B47**(1993), 14977.

MACROSCOPIC QUANTUM EFFECTS IN SINGLE CRYSTAL $\text{Dy}(\text{Fe}_{0.8}\text{Al}_{0.2})_2$ *

ZHONG WEN-DING CHEN HAI-YING LIU ZUN-XIAO WU JIAN-HUA LI GUO-ZHONG

(*Department of Physics, Peking University, Beijing 100871*)

(Received 26 July 1999)

ABSTRACT

The temperature dependence of demagnetization curve, intrinsic coercivity and magnetic viscosity has been measured on single crystal $\text{Dy}(\text{Fe}_{0.8}\text{Al}_{0.2})_2$ in $[100]$, $[110]$ and $[111]$ directions. The staircase and a large jump of demagnetization curve, an obvious peak of coercivity vs temperature, and the magnetic viscosity being independent of the temperature etc., were observed. The observed features were analyzed within the theory of the macroscopic quantum effects for domain walls tunneling in the single crystal. A crossover temperature has been observed at $T_{\text{cr}} = 5.5$ K between classical thermal activation and quantum tunneling regimes.

PACC: 7560; 7560L; 7590

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19674002).