

铁超薄膜的铁磁相变和垂直磁各向异性*

郭文莉 史隆培

(中山大学物理学系, 广州 510275)

摘要 根据表面原子自旋倾向垂直于表面取向的海森堡模型,运用格林函数方法讨论了1~8层面心铁磁薄膜的铁磁相变和垂直磁各向异性.证明了铁磁薄膜其序参数(自发磁化)是随薄膜中空间位置而变化的,而薄膜中不同位置的居里温度是相同的.计算了表面各向异性常数 $K_s(T)$,有效体各向异性常数 $K_v(T)$ 和形状各向异性常数 $K_d(T)$ 与温度的关系,证明了在一定的温度和厚度下薄膜存在垂直剩磁($K_v(T) - K_d(T) > 0$),在弱表面各向异性(SA)的情况下,7层面心铁磁薄膜仍具有垂直磁化,理论与实验结果吻合.

关键词 薄膜,铁磁相变,各向异性

分类号 O 484.43

从在 Cu(001)上外延生长的面心(fcc)Fe膜(Fe/Cu(001))的实验中发现,薄膜和体的磁行为有很大差别^[1-4].虽然各种实验结果之间有不少差异,但都表明了一个事实:薄膜的垂直剩磁和磁化强度在垂直、平面之间的转变强烈地依赖于薄膜的温度和厚度.又有实验证明^[4],对于 fe/Cu(001),7层铁磁薄膜仍具有垂直磁化,史隆培^[5,6]在 fcc Fe膜具有表面各向异性基础上给出一个理论,计算了1~6层 fcc铁磁薄膜的铁磁相变和垂直磁各向异性,证明垂直与平面磁化的转变温度与薄膜的厚度、自发磁化强度和表面各向异性强弱有关,并预测7层 fcc铁磁薄膜仍具有垂直磁化,其结果与实验相当吻合.我们将在 [5]的基础上进一步考察7~8层 fcc铁薄膜的铁磁相变和垂直磁各向异性.

1 模型

J. G. Gay et al^[7]把自旋-轨道相互作用运用到自洽局域轨道方法中计算 Fe Ni V Co单层薄膜的自旋各向异性,发现 Fe和 V的易磁化方向为垂直平面,而 Ni和 Co的则在平面内.按每个原子具有的能量计,单层的各向异性很大.例如, bcc Fe为 0.4 meV/atom,是磁体 Fe(4 eV/atom)的100倍.这是由于单层对称性减少的缘故.为了研究 fcc铁磁薄膜中铁磁相变和垂直磁各向异性的性质,必须考虑表面自旋各向异性.

我们讨论一个面心立方格子,由 n 层原子层(n ML)组成,每一格点有两个电子自旋.薄膜表面平行于(001)面且垂直于 z 轴,在 z [001]方向上薄膜有有限层原子层,而在 x [100]和

* 国家自然科学基金(19474073)资助项目

收稿日期: 1996-06-11 郭文莉,女,24岁,美国纽约州立大学博士研究生

y [010]方向上则有无限多个原子 $N(N \rightarrow \infty)$. 用两种不同的坐标系: 晶格坐标 (x, y, z) , z 轴垂直于薄膜表面; 自旋量子化坐标 (X, Y, Z) , Z 轴为量子化轴. 对于易垂直各向异性的薄膜两种坐标重合, 而对于易平面各向异性的则 Z 与 y , X 与 z , Y 与 x 重合^[6].

薄膜内层每一格点的自旋存在着与 12 个最近邻自旋的交换作用, 而表面自旋除受到 8 个最近邻自旋的交换作用外, 还存在表面各向异性的作用, 它是由晶场和自旋轨道耦合作用引起的. 系统的自旋哈密顿量包括三部分: 海森堡交换作用项, 表面各向异性 (SA) 项和退磁 (形状各向异性) 项, 用二次量子化的方法可推导出其表达式为:

$$H = - \sum_{\nu, f} J_{f\nu} S_f^\nu S_{f+\nu}^\nu - \sum_f D_f (S_f^z)^2 + \frac{1}{2V} N_z \sum_{f\nu} S_f^z S_{f+\nu}^z \quad (1)$$

其中 f 为格点位置, 可表示为沿 xy 平面的矢量坐标 j 和沿 z 方向的坐标 ν , $f = (j, \nu)$, $\nu = 1, 2, 3, \dots, n$ 代表薄膜的层数, $T = x, y, z$ 表示坐标分量. 为简单起见, 只计入最近邻交换积分 $J_{f\nu} = J$, 并假定 (nML) 薄膜具有对称表面, 表面的自旋倾向垂直于平面. 表面各向异性常数

$$D_f = D = \begin{cases} D > 0 & (\nu = 1, n) \\ 0 & (\nu = 2, 3, \dots, n-1) \end{cases}$$

N_z 为垂直退磁因子, N_x 和 N_y 为平面退磁因子, 近似 $N_z = 4^c$, $N_x = N_y = 0$. V 是薄膜体积, ν 为原胞体积, $V = 2N^2 n \nu$, $\nu = a^3/4$. μ_B 是磁矩, μ_S 是一个原子的磁矩, 近似认为 $S = 1$, $\mu_B = 2 \mu_B$ ($\mu_B = 0.927 \times 10^{-20} \text{ erg/oe}$).

由于薄膜具有单轴各向异性, 自发磁化方向均平行 (或垂直于表面, 或平行于表面), 由于薄膜在一个方向上失去平移不变性, 自发磁化的大小则随层而变化.

2 1-8 层 fcc 铁磁薄膜的铁磁相就和垂直磁各向异性

对 1-6 层 fcc 铁薄膜我们曾运用格林函数方法进行了研究^[5,6].

2.1 7-8 层 fcc 铁磁薄膜的铁磁相变

考虑易垂直各向异性的情况. 由于 z 轴是量子化轴, $\langle S_f^z \rangle = \varrho_f S$, $\langle \rangle$ 表示对式 (1) 所描述的系统的统计平均值. xy 平面具有平移不变性, ϱ_f 只与 ν 有关即 $\varrho_f = \varrho_\nu$. 用双时格林函数处理这个问题, 我们用如下近似方法截断高阶格林函数^[6].

$$\langle\langle S_f^z S_h^+ | B_g \rangle\rangle = \langle S_f^z \rangle \langle\langle S_h^+ | B_g \rangle\rangle \quad (f \neq h)$$

$$\langle\langle S_f^z S_f^+ + S_f^+ S_f^z | B_g \rangle\rangle \approx \Gamma_f \langle S_f^z \rangle \langle\langle S_f^+ | B_g \rangle\rangle \quad (f = h)$$

其中 $\Gamma_f = \langle 3(S_f^z)^2 - S(S_f^+ + 1) \rangle / \langle S_f^z \rangle^2$

从 0K 到居里点, Γ_f 随温度从 1 变到 3/4. 从式 (1) 我们可以获得^[5,6]

$$S \varrho_\nu = \frac{(S - P_\nu)(1 + P_\nu)^{2S-1} + (1 + S + P_\nu) P_\nu^{2S-1}}{(1 + P_\nu)^{2S-1} - P_\nu^{2S-1}} \quad (2)$$

$$P_\nu = \frac{1}{(2\pi)^2} \iint d^2k_x d^2k_y \sum_{k=1}^n \frac{U_{\nu k}^2}{\exp(k_{\nu k} / K_B T) - 1} \quad (3)$$

$$P_\nu = P_{n+1-\nu}$$

其中 K_B 为波尔曼常数, T 为绝对温度. $k_{\nu k}$ 由下列特征方程决定:

$$\begin{vmatrix} k_{hk} - E_1 & J_1 & & & & \\ J_2 & k_{hk} - E_2 & J_2 & & & \\ & J_\nu & k_{hk} - E_\nu & J_\nu & & \\ & & J_2 & k_{hk} - E_2 & J_2 & \\ & & & J_1 & k_{hk} - E_1 & \end{vmatrix} = 0 \quad (4)$$

$$E_1 = 4JS^e_1 [1 - \cos(h_x/2) \cos(h_y/2)] + 4JS^e_2 + D\Gamma_1 e_1 - 4Ms$$

$$E_\nu = 4JS^e_\nu [1 - \cos(h_x/2) \cos(h_y/2)] + 4JS^e_{\nu+1} + 4JS^e_{\nu-1} - 4Ms \quad (\nu = 2, \dots, n-1) \quad (4a)$$

$$J_\nu = 2JS^e_\nu [\cos(h_x/2) + \cos(h_y/2)] \quad (\nu = 1, 2, 3, \dots, n) \quad (4b)$$

$$\Gamma_1 = [2S(S+1) - 3(1+2P_1)S^e_1] / (S^e_1)^2 \quad (4c)$$

$$M_s = M_s(0) \prod_{\nu=1}^n e_\nu; \quad M_s(0) = S/V \quad (4d)$$

$$e_\nu = e_{n-1-\nu}; \quad E_\nu = E_{n-1-\nu}$$

k_{hk} 和 $U_{hk}^2 = A_{\omega}(k_{hk}) \prod_{l \neq k} (k_{hk} - k_{hl})$ 的值参见 [8].

$$\text{其中 } h_x = 2\pi n_x / N, \quad h_y = 2\pi n_y / N \quad (4e)$$

n_x 和 n_y 取 $0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm N/2$ ($N \rightarrow \infty$), k 和 l 分别为 $1, 2, 3, \dots, n$. $A_{\omega}(k_{hk})$ 是上述行列式 (4) 之 ν 行 ν 列子行列式.

利用式 (2) ~ (4e), 我们可以计算自发磁化强度 σ_ν ($\nu = 1, 2, 3, \dots, n$) 与温度的关系, 由此可确定居里温度 T_ν , 计算结果表明一般 $\sigma_1 \neq \sigma_2 \neq \sigma_3 \dots$ 但居里温度是相同的 $T_{c1} = T_{c2} = T_{c3} = \dots$.

另外, 从式 (2) ~ (4e) 及高温近似 ($P_\nu \rightarrow \infty$), 获得薄膜中原子层的居里温度

$$T_{C\nu} = [12S(S+1) / 3G] (J / K_B) \quad (5)$$

其中 $C_\nu = \frac{1}{(2\pi)^2} = \iint d h_x d h_y \sum_{k=1}^n \frac{12S^e_\nu U_{hk}^2}{k_{hk}}$ (6)

$$C_\nu = C_{n-1-\nu}; \quad T_{C\nu} = T_{Cn-1-\nu}; \quad (\nu = 1, 2, 3, \dots, n) \quad (7)$$

因为 k_{hk} / e_ν 依赖于 e_ν / e_1 (ν 和 $1 = 1, 2, 3, \dots, n$)^[8], 式 (6) 的积分收敛条件是 e_ν / e_1 非零有限或 e_ν ($\nu = 1, 2, 3, \dots, n$) 在居里温度 T_c 时同时趋于零. 根据 $T_{c-} = T_{c1} = T_{C\nu}$ 或 $C_1 = C_\nu$ ($\nu = 2, 3, \dots, n/2$ 或 $(n+1)/2$) 的条件, 居里温度 T_c 和 e_ν / e_1 用式 (5) 和式 (6) 可同时确定. 当把上述这两种确定居里温度的方法相比较时, 它们的结果是一致的.

$$T_b = 4S(S+1) / C (J / k_B), \quad C = 1.34466 \quad (8)$$

对于 fcc 铁磁体 (对应于 n ML 薄膜, $n \rightarrow \infty$) 假设面心铁磁体的居里温度 T_b 为 1000K, 由 (8) 式可得 $J = 14.483$ meV. 本文采用约化温度 T / T_b 表示温度 T , 用约化居里温度 T_c / T_b 表示 n ML 薄膜的居里温度 T_c .

用计算机计算在不同 D_j ($D_j = D / J$) 情况下 7ML、8ML 的自发磁化与温度的关系, 我们发现, 薄膜的序参数 (自发磁化) 是随薄膜层而变化的, 而各层的居里温度是相同的, 并且两者随自旋在表面的束缚程度变化而变化. 当 D_j 较小时 ($D_j \leq 4$), 表面的序参数值小于各里层的序参数值; 当 D_j 较大时 ($D_j \geq 4$), 表面的序参数值大于各里层的序参数值与 1-层的结果相似^[5,6], 但是 7ML 和 8ML 更接近于铁磁体的行为.

居里温度 T_c 与 D / J 在 7ML、8ML 情况下的关系如图 1 所示, 结果表明, 居里温度随 D_j 的增大而单调递增, 当 D_j 大到一定数值时, 居里温度大于铁磁体的居里温度. 应该强调指

出图的结果是在忽略退磁 (形状各向异性) 项情况下得到的, 以下本文讨论垂直磁各向异性时, 退磁项必须要考虑.

2.2 7~8 层 fcc 铁磁薄膜的垂直磁各向异性

假定磁各向异性能与薄膜中自发磁化与晶轴 (x [100], y [010], z [001]) 的方向余弦 V, V, V 有关. 建立一个新的坐标轴 (X, Y, Z), Z 轴是自发磁化方向 (量子化轴), θ 是 z 轴与 Z 轴的夹角.

可以获得系统自由能 F 的表达式:

$$F = F_{ex} + F_k + F_d = -K_B T \ln p(e^{-H/k_B T})$$

$$f = F/V \tag{9}$$

其中 F_{ex} 是交换能, F_k 是晶体各向异性能, F_d 是退磁 (形状各向异性) 能. V 是薄膜的体积, 自由能 f 和单轴各向异性常数 $K_u(T)$ 可表示为^[6]

$$f = f_0 + K_u(T) \sin^2 \theta + \dots$$

$$K_u(T) = (1/V) \langle \partial H / \partial (\sin^2 \theta) \rangle = K_v(T) - K_d(T) \tag{10}$$

定义温度 T 时薄膜的有效体各向异性常数 $K_v(T)$ 和形状各向异性常数 $K_d(T)$.

对于 nML fcc 铁磁薄膜来说, $V = 2N^2 na^3 / 4$, 原胞体积 $v = a^3 / 4$, $M_s(0) = S/V = 1749G$, 表面一个原子所占面积为 $a^2 / 2$, a 是晶格常数 (3.60\AA), n 是薄膜原子层数.

假定垂直磁各向异性仅来自 SA , $D_1 = D_n = D$, $D_\nu = 0$ ($\nu = 2, 3, \dots, n-1$). 我们可以获得^[5,6]

$$\Gamma_1(T) = 2 [S(S+1) - (3/2)(1+2P_1)S e_1] / (S e_1)^2 \tag{11}$$

$$K_v(T) = (2AD/a^3 n) \Gamma_1(T) (S e_1)^2 \tag{12}$$

$$K_d(T) = AK_s(T) / d \quad d = na/2$$

$$K_d(T) = 2M_s^2(T) = 2M_s^2(0) \left(\sum_{\nu=1}^n e_\nu \right)^2 \tag{13}$$

$M_s(T)$ 是温度 T 时的自发磁化强度. A 是表面数 ($n=1$ 时 $A=1$; $n \geq 2$ 时 $A=2$), $K_s(T)$ 是薄膜在温度 T 时的表面各向异性常数. 在绝对零度时, 由于 $e_1 = 1$, $P_1 = 0$, $\Gamma_1(0) = 1$ 和式 (12) 可得:

$$K_s(0) = D/a^2$$

$$K_v(0) = 2AD/a^3 n$$

我们讨论 fcc 铁磁薄膜由于表面和退磁各向异性能之间的关系形成垂直剩磁的稳定条件. 如果 $K_u(T) > 0$, 则由于表面各向异性能大于退磁能而产生垂直剩磁, 这取决于四个因素: 表面各向异性强度 D , 膜厚 n , 温度 T (或 e 和 Γ_1) 以及绝对饱和磁化强度 $M_s(0)$. 一般来说, 对于弱表面各向异性¹, $e_1 < e$ ($\neq 1$), 当温度升高时 e_1 比 e 下降得更快. 因此, 低温、薄膜、大 D 和小 $M_s(0)$ 是垂直剩磁存在的有利条件. 由式 (10)、式 (12)、式 (13) 和 $K_u(0) \geq 0$ 我们可以得到 0K 时 PR 存在的条件:

$$ADn - 4M_s(0) \geq 0$$

fcc Fe 薄膜的临界厚度可由上式决定.

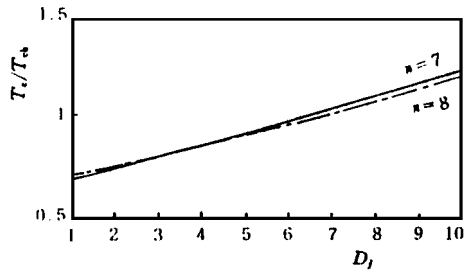


图 1 面心铁薄膜的 $T_c - D_j$ 关系

对 n ML, 若用截断近似 Γ_1 , 我们可以证明 $K_u (Tr) = 0$ 和自旋波谱底端能隙 k_{0n} 为 0 是等价的. 对 7ML 和 8ML, 根据^[8], 由 $k_{07} (Tr) = 0$ $k_{08} (Tr) = 0$ 可得

对于 7ML: $2D\Gamma_1 S e_1^2 - (2e_{1+} + 2e_{2+} + 2e_{3+} + e_4) - 4M_S = 0$

对于 8ML: $D\Gamma_1 S e_1^2 - (\sigma_{1+} + \sigma_{2+} + \sigma_{3+} + \sigma_4) - 4^C M_S = 0$

上面两式的通式为 $AD\Gamma_1 S e_1^2 - 4^C M_S \sum_y e_y = 0$

而由 (10) 式及上通式 $K_u (Tr) = 2AD\Gamma_1 (S e_1)^2 / a^3 n - 2M_S^2 = (AD\Gamma_1 S e_1^2 - 4M_S \sum_y e_y) S / (2na^3 / 4) = 0$

可见 $K_u (Tr) = 0$ 与 $k_{07} (Tr) = 0$ (或 $k_{08} (Tr) = 0$) 二者是等价的.

我们分别在一定的 D_j 的情况下计算了 $n=7, 8$ 时的 $e_y, \Gamma_1, K_v, K_d, K_s, K_u$ 及 k_{07}, k_{08} 与温度 T 的关系, 在 0K 时 $e_y, \Gamma_1, K_v, K_d, K_s, K_u, k_{07}, k_{08}$ 有最大值, 然后随着温度的升高均单调递减如图 2 所示.

表面各向异性可以分为弱 SA 和强 SA 两种情形. 在弱 SA 情况下, 表面原子层的自发磁化强度小于其它各原子层的自发磁化强度, 如果 $K_v (Tr) - K_d (Tr) = 0$ 那么在转变温度 Tr 薄膜将会发生垂直 ($T < Tr$) 和平面 ($T > Tr$) 磁化的可逆转变; 在强 SA 情况下, 表面原子层的自发磁化强度大于其它各原子层的自发磁化强度, 如果 $K_v (Tr) - K_d (Tr) = 0$, 那么在转变温度 Tr 薄膜将会发生平面 ($T < Tr$) 和垂直 ($T > Tr$) 磁化的可逆转变.

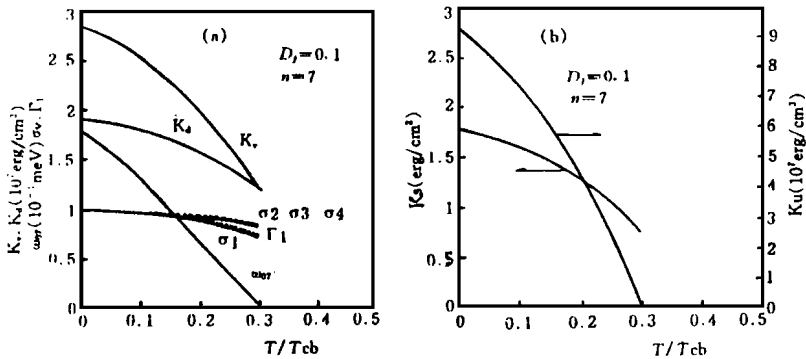


图 2 层面心铁薄膜的性质与温度的关系

- (a) $K_v, K_d, W_{07}, e_y, \Gamma_1$ 与 T 的关系;
- (b) 表面各向异性常数 K_s 与 T 的关系; 单轴各向异性常数 K_u 与 T 的关系

我们考虑 $n=7, D_j=0.1$ 的情况, 计算结果如图 2 所示. 发现存在有转变温度, 而且在转变温度时 k_{07} 和 K_u 同时为零, 也就是在 $Tr \approx 300K, k_{07} = K_u = 0$, 而各层的自发磁化强度, K_v, K_d 并不为零, 这时候积分 (3) 不能再收敛. 再看图 2, 发现 K_s 在 0K 时有最大值, $K_s(0) = 1.79024 \text{ erg/cm}^2, D = 1.4483 \text{ meV}$. 随着温度的升高而单调下降, 直到温度为 Tr 为止, 曲线 $K_s - T$ 可以反映 PR 的稳定性随温度的变化情况. 从图 2 我们可以看出 K_u 随温度 T 变化的关系. 在 0K 到 Tr 范围内 $K_u > 0$, 即存在有垂直剩磁 (PR), 在温度 Tr 时发生垂直磁化和平面磁化的可逆转变.

为了与 1~6 层 fcc 铁磁薄膜的磁化状态^[5]相比较, 我们在 $D = 1 \text{ meV}, 1.1 \text{ meV}$ 的情况下计算了 7 层和 8 层的转变温度. 居里温度 T_c 和转变温度 Tr 在不同 D 的情况下与薄膜厚度

的关系如图 3 所示. 从这个图我们可以直观地看到薄膜的磁化状态与薄膜的厚度和温度的关系. 图中曲线以下的区域描写垂直磁化状态稳定的范围. 曲线以上的区域表示平面磁化状态稳定的范围. 应该特别注意 $D = 1 \text{ meV}$ 的情况, 它相应于绝对零度时每个表面原子具有 0.5 meV 的各向异性, 此值近似于 Gay 和 Richter 对体心铁的计算结果 (0.4 meV 原子). 图 3 显示对于 1~6 层, $D = 1 \text{ meV}$ 时与实验结果符合^[1-3]. 对于 7 层, $D = 1 \text{ meV}$ 时, $T_r \approx 10 \text{ K}$, 也很好地解释实验^[4]的结果.

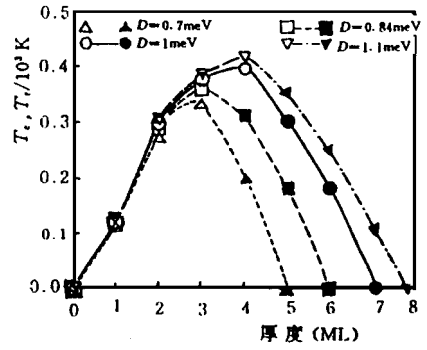


图 3 T_c , T_r 与薄膜厚度和表面各向异性的关系

参 考 文 献

- 1 Pescia D, Stapanoni M, Bona G L et al. Phys Rev Lett, 1987, 58: 2126
- 2 Liu C, Bader S D. J Appl Phys, 1990, 67: 5758
- 3 Pappas D P, Kamer K P, Miller B P et al. Phys Rev Lett 1990, 64: 3179
- 4 Kief M T, Egelhoff W F, Jr, J Appl Phys, 1993, 73: 6195
- 5 Shi Longpei. Physics Letters, 1994, A 189: 409
- 6 Shi Longpei. J Phys.: Condens. Matter, 1994, 6: 1183
- 7 Gay J G, Richter R. J Appl Phys, 1987, 61: 3362
- 8 郭文莉. [硕士学位论文] 中山大学物理系, 1996

Ferromagnetic Phase Transition and Perpendicular Magnetic Anisotropy in 1~ 8 Monolayer Fcc Iron Films

Guo Wenli* Shi Longpei

Abstract The ferromagnetic phase transition and perpendicular magnetic anisotropy in one to eight monolayer fcc iron films are studied by the Green-function method based upon the Heisenberg model with perpendicular spin orientation of the atoms at the surfaces. The model calculation shows that the order parameter (spontaneous magnetization) changes with the atomic planes in the ferromagnetic films but the Curie temperatures of the atomic planes are all the same. We also calculate the surface anisotropy constant $K_s(T)$, the effective volume anisotropy constant $K_v(T)$ and the shape anisotropy constant ($K_v(T) - K_d(T) > 0$) for an intermediate range of thickness of ultrathin films and temperature and prove that seven monolayer fcc iron film still has perpendicular remanence which agrees with the experiments for the ultrathin films of fcc Fe on Cu (001).

Keywords film, transition, anisotropy

* Department of Physics, State University of New York at Buffalo, Buffalo, New York 14260