

УДК 537.61

© 1991

ПОВЕРХНОСТНАЯ МАГНИТНАЯ АНИЗОТРОПИЯ И ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В АМОРФНЫХ МАГНИТНЫХ ПЛЕНКАХ РЗ—ПМ

А. К. Звездин, Г. В. Сайко, С. Н. Уточкин

В приближении среднего поля рассмотрены спин-ориентационные фазовые переходы в аморфных магнетиках вблизи точки компенсации для объемного материала и с учетом поверхностных эффектов. Показано, что учет поверхностной анизотропии может существенно изменить характер магнитных фазовых переходов. Найден критерий влияния поверхностной анизотропии на характер фазовой диаграммы.

Пленки аморфных сплавов редкая земля—переходный металл (РЗ—ПМ) привлекают к себе большое внимание, в частности, как среда для магнитооптической памяти. Несмотря на большое число работ, посвященных этим аморфным пленкам, столь немаловажный фактор, как влияние поверхности, а точнее, свойств приповерхностного слоя на их магнитные характеристики, остается фактически неизученным, особенно с теоретической точки зрения.

К появлению неоднородностей по толщине могут приводить как технология приготовления, так и процессы, связанные со старением материала (см., например, [1-3]).

К первой группе причин можно отнести то, что пленки аморфных сплавов получают напылением на диэлектрическую подложку; кроме того, в ряде случаев поверх магнитоактивного слоя наносится один или несколько защитных слоев. Так, например, в работе [2] отмечена существенная роль монокристалличности подложки для стабилизации аморфного состояния и перпендикулярной магнитной анизотропии (ПМА) в пленках. При этом определяющую роль играют неупругие деформации и эффекты формы (ориентация кристаллоподобных кластеров).

Ко второй группе прежде всего следует отнести преимущественное окисление активных редкоземельных ионов в процессе эксплуатации пленки, приводящее к изменению параметров обмена и влияющее на парное упорядочение ионов [3, 4].

В общем случае, следуя классификации [5], можно отметить, что поверхностные эффекты могут влиять как на ПМА (механические напряжения, эффекты формы и парное упорядочение) и коэрцитивность пленки, так и на параметры обмена РЗ-подсистемы (окисление).

В настоящей работе сделана попытка провести теоретический анализ влияния поверхностной анизотропии на фазовые диаграммы и индуцированные магнитным полем фазовые переходы в обсуждаемых пленках.

1. Формулировка задачи. Исходные уравнения

Взаимодействие между ионами редкой земли (РЗ—РЗ) в пленках РЗ—ПМ с составами, близкими к компенсационным, ввиду малой протяженности волновых функций $4f$ -электронов является косвенным и по меньшей мере на порядок слабее прямого взаимодействия между ионами переходного металла (ПМ—ПМ), которое определяет температуру упорядочения.

Взаимодействие РЗ—ПМ носит косвенный характер, определяет температуру компенсации и является промежуточным между РЗ—РЗ и ПМ—ПМ [6].

В качестве модели ферримагнетика примем двухподрешеточную модель, в которой одна из подрешеток (ПМ) намагничена до насыщения внутренним обменным полем, а вторая (РЗ) ввиду малой энергии взаимодействия РЗ—РЗ представляет собой идеальный парамагнетик, находящийся во внешнем поле и обменном поле, созданном ПМ-подсистемой. Применимость этой модели, используемой также для описания кристаллических ферримагнетиков [7], определяется упомянутой выше иерархией обменных взаимодействий.

Таким образом, плотность термодинамического потенциала (без учета поверхностной анизотропии) можно записать как

$$\varphi = - \left\langle \int_0^{H_{\text{eff}}} M_r(x) dx \right\rangle - M_d \mathbf{H} - K_a + \varphi_{\text{неодн. об}}, \quad (1)$$

где первый член — усредненный по малому, но макроскопическому объему (в пределах которого намагниченность практически не изменяется) термодинамический потенциал редкоземельных ионов, намагниченных эффективным магнитным полем \mathbf{H}_{eff} , которое равно

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H} - \lambda M_d, \quad (2)$$

где λ — параметр обмена РЗ—ПМ; второй член — зеемановская энергия взаимодействия ПМ-подсистемы, намагниченность которой есть M_d , с внешним магнитным полем; третье слагаемое описывает анизотропные члены; четвертое слагаемое учитывает неоднородное обменное взаимодействие.

Анизотропию аморфной магнитной пленки можно описывать одноосной составляющей, имеющей вид

$$K_a = K_u \cos^2 \psi,$$

где ψ — угол между легкой осью и магнитным моментом.

Предполагая, что получаемые магнитные структуры слабонеколлинеарны (обменные поля много больше анизотропных и внешних полей), ψ можно полагать углом между легкой осью и намагниченностью ПМ-подсистемы. При этом ψ является единственным параметром порядка, описывающим систему, так как направление магнитного момента j -подсистемы однозначно определяется внешним полем и ориентацией d -подсистемы. K_u — константа наведенной анизотропии, включающая в себя и вклад редкоземельных ионов. Такая запись энергии анизотропии оправдана при $H \ll \lambda M_d$ (подробнее см. [7, 7a]).

Неоднородное обменное взаимодействие представим в виде $A (d\vartheta/dz)^2$, где в нашем случае (т. е. в предположении однородности системы в плоскости пленки) ϑ — угол между магнитным полем и ПМ-подсистемой, A — параметр ПМ—ПМ обмена.

В первом приближении основным механизмом влияния поверхностных эффектов есть появление наведенной анизотропии обменного характера. Поверхностную энергию определим как $\Phi_{\text{пов}} = -k_s \cos^2 \psi_s$, где ψ_s — значение угла ψ на поверхности пленки.

Для удобства рассмотрим пленку $|z| \leq d$, намагничиваемую в плоскости пленки (а) и нормально к поверхности пленки (б). Положим также, что анизотропия на обеих сторонах пленки одинакова $k_s(d) = k_s(-d)$.¹ Тогда наиболее выгодным является симметричное распределение намагниченности ($\vartheta(z) = \vartheta(-z)$). Это позволяет ограничиться рассмотрением области $0 \leq z \leq d$, при этом

$$\frac{d\vartheta}{dz} \Big|_0 = 0. \quad (3)$$

¹ Данное допущение вводится без ограничения общности конечных результатов.

Итак,

$$\Phi = \int_0^d \left\{ A \left(\frac{d\vartheta}{dz} \right)^2 - M_d H - \int_0^{H_{\text{eff}}} M_r(x) dx - K_u \cos^2 \vartheta \right\} dz - k_s \cos^2 \vartheta_s.$$

При этом $\varphi = \vartheta$ для случая (б), $\varphi = \pi/2 - \vartheta$ в случае (а). В данном случае M_r отвечает усредненной по макроскопическому объему намагниченности редкоземельной подсистемы.

Для изучения термодинамического потенциала проварьируем функционал. При этом получаются уравнение Лагранжа—Эйлера и граничные условия

$$2A \frac{d^2 \vartheta}{dz^2} = \sin \vartheta M_d H \left(1 - \lambda \chi(\vartheta) \pm \frac{2K_u \cos \vartheta}{M_d H} \right), \quad (4)$$

$$\left. \frac{d\vartheta}{dz} \right|_s = \mp \frac{k_s}{2A} \sin 2\vartheta_s, \quad (5)$$

где нижний знак относится к (а), $\chi(\vartheta) = M_r(H_{\text{eff}})/H_{\text{eff}}$. Для выяснения качественных закономерностей M_r можно аппроксимировать функцией Бриллюэна [8] $M_r = M_{r0} B_j(H_{\text{eff}} \mu / T)$. Такая форма записи приемлема для составов, содержащих слабоанизотропные редкоземельные ионы (Gd^{3+} , Eu^{2+}). Для сильноанизотропных РЗИ необходимо учитывать эффекты воздействия поля ближайшего окружения, но учет этих изменений не приводит к качественным изменениям фазовых диаграмм.

Таким образом, уравнения (3)—(5) образуют краевую задачу, описывающую данную структуру.

Можно выделить два подхода к анализу краевой задачи: исследование первого интеграла уравнения Лагранжа—Эйлера и изучение устойчивости краевой задачи.

В первом случае ищется инвариант краевой задачи для неоднородного термодинамического потенциала (см., например, [9])

$$2A \frac{d^2 \vartheta}{dz^2} = \frac{\partial \varphi(\vartheta)}{\partial \vartheta},$$

$$\left. \frac{d\vartheta}{dz} \right|_s = \frac{k_s}{2A} \sin 2\vartheta_s, \quad \left. \frac{d\vartheta}{dz} \right|_0 = 0.$$

Однако практические расчеты по подобной схеме наталкиваются на значительные сложности вычислительного характера и их можно провести лишь в некоторых простых случаях [10].

Более простой и наглядный способ основан на анализе устойчивости соответствующей краевой задачи. При этом если рассматривается нелинейное дифференциальное уравнение второго порядка, то можно говорить об устойчивости бифуркационной задачи [11]; для выяснения особенностей данной краевой задачи достаточно ограничиться линейризованным уравнением.

Так как в случаях (а) и (б) картины фазовых переходов отличаются принципиально, то удобно рассмотреть эти варианты отдельно (n — нормаль к поверхности пленки).

а. Фазовая диаграмма пленки при $H \perp n$. Переориентация происходит путем двух фазовых переходов второго рода (рис. 1). В определенной области температур могут существовать две угловые фазы: высокополевая и низкополевая, переходящие друг в друга в окрестности узкого горла [8].

Влияние поверхностной анизотропии можно учесть, рассматривая линии потери устойчивости симметричных фаз. Для этого необходимо линейризовать дифференциальное уравнение

$$\Delta \vartheta = \sin \vartheta \frac{M_d H}{2A} \left(1 - \lambda \chi(\vartheta) - \frac{2K_u \cos \vartheta}{M_d H} \right) \quad (6)$$

вблизи линий потери устойчивости $\vartheta=0$ или $\vartheta=\pi$. Подставляя в линеаризованное уравнение (6) и граничные условия

$$\vartheta(\mathbf{r}) = f(z) e^{i\varphi},$$

где \mathbf{x} и ρ — двумерные векторы в плоскости пленки [9], мы получим задачу на собственные значения типа Штурма—Лиувилля. Минимуму функционала (1) соответствуют положительные собственные значения краевой задачи.

Проводя вычисления, получаем трансцендентное выражение для x^2

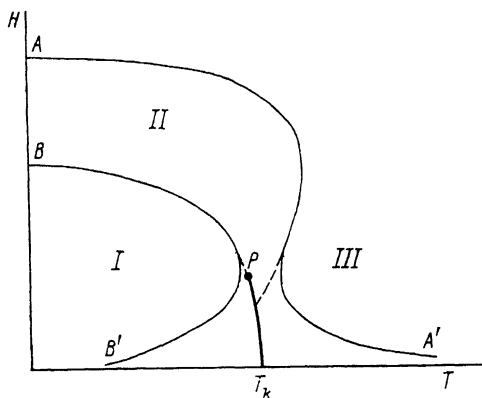


Рис. 1. Фазовая диаграмма аморфного магнетика в случае, когда магнитное поле лежит в плоскости пленки, $K > 0$, $k_s < 0$, $h < -1$, $\vartheta = \pi$ (I), $0 < \vartheta < \pi$ (II), $\vartheta = 0$ (III).

Сплошная линия — фазовые переходы второго рода без учета поверхностной анизотропии, штриховая линия — фазовые переходы второго рода с учетом поверхности, жирная линия — фазовые переходы первого рода с учетом поверхности. T_k — температура компенсации, P — трикритическая точка. Линия потери устойчивости фаз не обозначены.

$$\text{th} \{x^2 d^2 + d^2 B\}^{1/2} = \frac{k_s d}{A} \{x^2 d^2 + d^2 B\}^{-1/2},$$

где

$$B = \frac{M_d H}{2A} \left(1 - \lambda \chi(0) - \frac{2K}{M_d H} \right)$$

или

$$B = -\frac{M_d H}{2A} \left(1 - \lambda \chi(\pi) + \frac{2K}{M_d H} \right).$$

Условие устойчивости фаз состоит в данном случае в отсутствии у данного уравнения действительных решений ($k_s > 0$). Таким образом определяется линия потери устойчивости

$$\delta = \beta \operatorname{arctg} \beta,$$

где

$$\delta = \frac{k_s d}{A}, \quad \beta = \left(\frac{k_s^2}{A^2 B} \right)^{1/2} < 1.$$

Вводя обозначения $\sigma = k_s^2 / kA$ и $h = BK/A$, можно записать

$$\delta = \left(\frac{\sigma}{h} \right)^{1/2} \operatorname{arctg} \left(\frac{\sigma}{h} \right)^{1/2},$$

σ зависит от поверхности и может принимать любое положительное значение. В этих обозначениях линии потери устойчивости

$$1 - \lambda \chi(\pi) + \frac{2K}{M_d H} (1 + h) = 0,$$

$$1 - \lambda \chi(0) - \frac{2K}{M_d H} (1 + h) = 0.$$

Если $K > 0$ и $k_s > 0$, то имеет место зародышеобразование на поверхности.

По своей сути зародышеобразование, так же как и фазовый переход второго рода в однородном материале, есть односторонняя суперкрити-

теская бифуркация [11], где нулевым решением отвечает коллинеарная фаза, а бифуркационному — угловая фаза. В случае, если поверхностная анизотропия нарушает вращательную инвариантность термодинамического потенциала, бифуркация разрушается по стандартному механизму с образованием изолированного решения ($\delta < 0$), в которое можно перевести нашу систему внешним воздействием. Переход сопровождается скачком угла, а значит, представляет собой фазовый переход первого рода.

Понятие зародышей и центров зародышеобразования свойственно системам с конечной корреляционной длиной (радиус магнитных корреляций $R_m \neq \infty$). У нас $R_m = \infty$ (так как рассматриваются усредненные свойства материала) и магнитное возбуждение, зародившееся на поверхности, отличается от нуля по всей толщине пленки. Однако формально поверхность можно рассматривать как центр зародышеобразования с $R_m > d$. Области

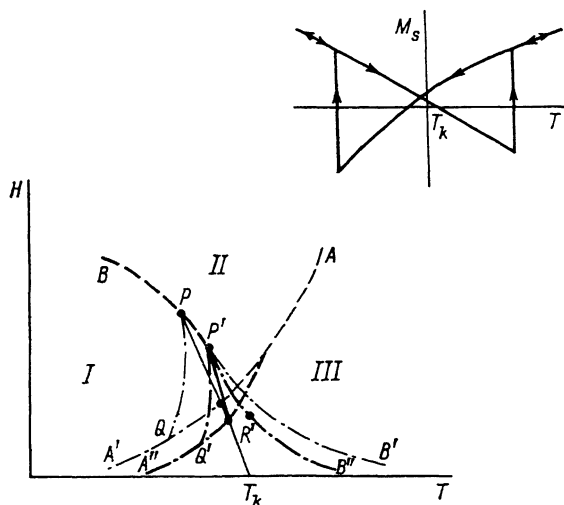


Рис. 2. Фазовая диаграмма аморфного магнетита в случае, когда магнитное поле нормально к плоскости пленки, $K' > 0$, $k_s < 0$, $0 < h < 1$, $\delta = \pi$ (I), $0 < \delta < \pi$ (II), $\delta = 0$ (III).

Штриховые линии — ЛФП второго рода, сплошные линии — ЛФП первого рода, штрихпунктирная линия — линия потери устойчивости. Тонкие и толстые линии относятся к случаю однородной пленки и наличия поверхностной анизотропии соответственно. R — точка пересечения ЛФП первого рода с линией потери устойчивости; Q', R', P' соответствуют учету поверхностной анизотропии. Остальные точки — см. рис. 1. На вставке изображен температурный гистерезис намагниченности при постоянном поле.

на фазовых диаграммах между кривыми устойчивости фаз объемного магнетика AA' (BB') и магнетика с поверхностью AA'' (BB'') в случае $R_m \neq \infty$ представляет из себя области гетерогенности — в них сосуществуют зародыши угловой фазы и коллинеарная фаза. По аналогии с $R_m \neq \infty$ понятие гетерогенности можно распространить и на случай $R_m \rightarrow \infty$.

В случае $k_s < 0$ имеет место закрепление спинов по поверхности. При этом если $h < -1$, то фазовая диаграмма меняется значительно — в низкополевой области спиновая переориентация идет путем фазового перехода первого рода (рис. 1).

Расстояние $d_0 = A/k_s$ характеризует распределение намагниченности по толщине пленки. Если $d_0 \ll d$, то вся неоднородность локализована вблизи поверхности. Если $d_0 \gg d$, тогда пленка слабонеоднородна.

6. Фазовая диаграмма пленки при $H \parallel n$. Фазовая диаграмма при $K > 0$ изображена на рис. 2. Переориентация в невозмущенном поверхностно случае осуществляется путем фазовых переходов первого и второго рода.

Линия PR представляет из себя линию фазовых переходов первого рода между угловой и коллинеарной ($\delta = \pi$) фазами

$$\Phi(\delta(x)) = \Phi(\pi), \quad \left. \frac{\partial \Phi}{\partial \delta} \right|_{\delta=\delta(x)} = 0,$$

где $\vartheta(x)$ — решение краевой задачи (3)–(5). Скачок угла возрастает от 0 в трикритической точке P до π в точке R . Участок RT_k — кривая фазовых переходов первого рода между симметричными фазами

$$\Phi(0) = \Phi(\pi).$$

Проводя точно такие же рассуждения, как и для предыдущего случая, можно записать, что линии AA' и BB' приобретают вид

$$AA'': 1 - \lambda\chi(0) + \frac{2K}{M_d H} (1 - h) = 0,$$

$$BB'': 1 - \lambda\chi(\pi) - \frac{2K}{M_d H} (1 - h) = 0,$$

где h определяется из уравнения

$$|\delta| = \left(\frac{\sigma}{h}\right)^{1/2} \operatorname{arctch}\left(\frac{\sigma}{h}\right)^{1/2}, \quad k_s < 0, \quad (7)$$

σ может принимать любое положительное значение.

Для выяснения поведения точек P , R , Q воспользуемся тем свойством [8], что

$$H_R \approx H_Q \approx H_P \approx H^* \approx (H_{\text{ан}} H_{\text{обм}})^{1/2},$$

где H^* соответствует точке пересечения линий устойчивости симметричных фаз, $H_{\text{ан}} = 2K/M_d (1-h)$, $H_{\text{обм}} = \lambda M_d$.

При $0 < h < 1$ диаграмма фазовых переходов качественно сохраняет особенности диаграммы однородного материала, а характерные магнитные поля являются монотонными убывающими функциями от h ($H_P = H_P(h) < H_P(0)$, $0 < h < 1$). При $h > 1$ переориентация осуществляется через угловую фазу.

Если $K > 0$, $k_s > 0$, то $K(1-h) > K$, так как $h < 0$ и происходит закрепление спинов на поверхности. Характерные магнитные поля являются монотонно убывающими функциями от h , структурных изменений фазовой диаграммы не происходит.

Из анализа фазовых диаграмм легко проследить за изменениями неко-

торых макроскопических характеристик пленки, в частности коэрцитивности, обусловленной процессами вращения намагниченности.

Для фазовой диаграммы типа (б) характерно существование перекрытия областей устойчивости различных фаз. Таким образом, существует область температур, в которой при перемагничивании обнаруживается гистерезис (см. вставку к рис. 2), обусловленный процессами необратимого вращения намагниченности. H_P представляет из себя не что иное, как максимальную коэрцитивность H_c для пленки данного состава. Поверхностная анизотропия изменяет коэрцитивную силу, h является интегральной (по толщине) характеристикой изменения H_c . Когда $h > 0$ ($k_s > 0$), то коэрцитивность уменьшается, а при $h < 0$ ($k_s > 0$), коэрцитивность пленки возрастает. При $h=1$ коэрцитивность обращается в нуль — вращение спинов при перемагничивании происходит обратимым образом. Коэрцитивность ведет себя пороговым образом как функция от перенормировочной переменной h (рис. 3).

2. П р и м е р

В качестве иллюстрации можно привести пленку GdCo с составом, близким к компенсационному [5]. Пленка обладает одноосной анизотро-

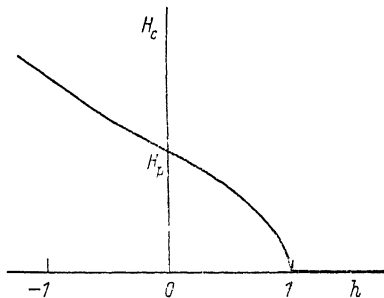


Рис. 3. Зависимость максимальной коэрцитивной силы от переменной h .

пией $K=2 \cdot 10^5$ эрг/см³. Обменные интегралы равны соответственно
 $\int (\text{Co—Co}) = 14.2 \cdot 10^{-15}$ эрг, $\int (\text{Co—Gd}) = -1.65 \cdot 10^{-15}$ эрг, $\int (\text{Gd—Gd}) = 0.2 \cdot 10^{-15}$ эрг.

Как видно, $\int (\text{Co—Co}) \gg \int (\text{Co—Gd}) \gg \int (\text{Gd—Gd})$, что говорит о применимости вышеизложенной модели. Полагая что $S_{\text{Gd}}=3.5$, $S_{\text{Co}}=0.59$, а среднее межатомное расстояние $a=2.86 \cdot 10^{-8}$ см, оценим обменную константу $A=1.73 \cdot 10^{-7}$ эрг/см. Тогда если толщина пленки $d=0.1$ мкм, а окисляется несколько приповерхностных монослоев, то $\epsilon=k_s/Kd=10^{-1} \div 10^{-3}$. В этом случае $h=1 \div 10^{-3}$ и d_0 соответственно меняется в пределах $0.86 \cdot 10^{-6}—0.86 \cdot 10^{-4}$ см. Как видно, при таких параметрах поверхность оказывает сильное влияние на характер переходов.

3. Обсуждение результатов

Мы рассмотрели механизм влияния поверхности на магнитные свойства ферромагнитных пленок, игнорируя тонкую магнитную структуру. Это, по всей видимости, хорошо применимо для аморфных пленок со слабоанизотропными редкоземельными ионами (Gd^{3+} , Eu^{2+}). Для других ионов следует принять во внимание существование стохастических магнитных структур в области спин-переориентационных переходов [12], приводящих к появлению дополнительных особенностей на фазовых диаграммах. Переход из коллинеарной фазы в угловую происходит вначале через разбиение магнетика на домены Имри—Ма [13], а затем путем непрерывной спиновой переориентации; при этом, естественно, фазовый переход второго рода становится размытым. Таким образом, предложенный в рамках среднего поля подход позволяет лишь в общем определить характер спиновой переориентации, не вдаваясь в детали тонкой магнитной структуры, что оказывается достаточным для выяснения поведения коэрцитивности и других усредненных магнитных характеристик.

Преимущественное влияние поверхности на анизотропию парного упорядочения существенно, по-видимому, на первых стадиях окисления, в дальнейшем более адекватна модель обменно-связанных слоев (см., например, [4]).

Нам представляется, что исследование влияния обработки поверхности (механическая обработка, травление, имплантация, лазерный отжиг, аппликации) на характер фазовой диаграммы и фазовые переходы, индуцированные внешним магнитным полем, может явиться эффективным методом изучения поверхности аморфных пленок и дать новые методы управления свойствами магнитных пленок. Нужно заметить, что, хотя здесь речь шла об аморфных пленках, основные выводы работы, относящиеся к характеру перестройки фазовых диаграмм и к возникновению неоднородных по толщине пленки магнитных структур, несомненно применимы и к другим типам магнитных пленок — эпитаксиальным и поликристаллическим.

Список литературы

- [1] Heitmann H., Hartmann M., Klahn S. // J. Appl. Phys. 1987. V. 61. N 8. P. 3331—3333.
- [2] Вершинина Л. И., Жигалов В. С., Журавлев А. В., Фролов Г. И. // Препринт № 642 ИФ СО АН СССР. Красноярск, 1990.
- [3] Heitmann H. et al. // J. Appl. Phys. 1987. V. 61. N 8. P. 3343—3345.
- [4] Кавалеров В. Г. // Автореф. канд. дис. М., 1989.
- [5] Буркова Л. В., Фролов Г. И. // Сб. «Аморфные пленочные сплавы переходных и редкоземельных металлов». Красноярск, 1988.
- [6] Rhyne J. J., Pickart S. J., Alperin H. A. // AIP Conf. Proc. 1973. N 18. P. 563—577.
- [7] Горанский Б. П., Звездин А. К. // Письма в ЖЭТФ. 1969. Т. 10. № 4. С. 196—200; а) Звездин А. К., Матвеев В. М. // ЖЭТФ. 1972. Т. 62. № 1. С. 260—271.
- [8] Белов К. П., Звездин А. К., Кадомцева А. М., Левитин Р. Э. Ориентационные переходы в редкоземельных магнетиках. М., 1979. 317 с.
- [9] Каганов М. И., Чубуков А. В. // ЖЭТФ. 1982. Т. 82. № 5. С. 1617—1627.

- [10] Бабкин Е. В. // Тез. докл. XII Всес. школы-семинара «Новые материалы микроэлектроники». Новгород, 1990.
- [11] Йосс Ж., Джозеф Д. Элементарная теория устойчивости и бифуркаций. М.: Мир, 1983. 215 с.
- [12] Звездин А. К., Сайко Г. В., Уточкин С. Н. // Препринт ИОФАН. 1990. N 68.
- [13] Андреевко А. С. и др. // ЖЭТФ. 1991. Т. 99. № 2. С. 540—550.

Институт общей физики
Москва

Поступило в Редакцию
14 января 1991 г.

В окончательной редакции
27 апреля 1991 г.

