

Механизм магнитного упорядочения в двухслойных пленках $Du_{1-x}Ni_x-Ni$

© С.Г. Овчинников, В.В. Марков, И.С. Эдельман, В.А. Середкин

Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук,
660036 Красноярск, Россия

E-mail: ise@iph.krasn.ru

(Поступила в Редакцию 31 июля 2006 г.)

Предложен механизм, объясняющий магнитное упорядочение диспрозия в двухслойных пленках $Du_{1-x}Ni_x-Ni$, обнаруженное авторами ранее при изучении магнитного кругового дихроизма. При величине x , превышающей пороговое значение (~ 0.05), слой $Du_{1-x}Ni_x$ в двухслойной пленке в интервале температур 80–300 К вносит в магнитный круговой дихроизм вклад, приблизительно равный величине магнитного кругового дихроизма, наблюдаемого в однослойной пленке Du при температурах, меньших температуры перехода Du в ферромагнитное состояние (~ 100 К). Поскольку магнитный круговой дихроизм является эффектом, линейным по намагниченности, такое его поведение связано с магнитным упорядочением слоя $Du_{1-x}Ni_x$ в двухслойных пленках вследствие одновременного действия двух факторов: включения Ni в слой Du и влияния сплошного подслоя Ni . Ферромагнитное упорядочение слоя диспрозия, допированного никелем, при условии атомного контакта со сплошным слоем никеля подтверждено полевыми зависимостями полярного и меридионального эффектов Керра. Показано, что оба слоя в двухслойной структуре намагничены параллельно и характеризуются анизотропией типа легкой плоскости. Предложен механизм магнитного упорядочения, связанный с изменением плотности состояний сплава $Du_{1-x}Ni_x$ за счет гибридизации с узкими пиками вблизи уровня Ферми, характерными для никеля.

Работа выполнена при поддержке программы ОФН „Спинтроника“ и комплексного интеграционного проекта СО РАН № 3.5.

PACS: 73.20.At, 73.61.At, 75.70.-i

1. Введение

Металлический диспрозий привлекает внимание исследователей в связи с чрезвычайно большой величиной магнитного момента, сложной магнитной фазовой диаграммой и возможностями практического применения наноструктур, включающих диспрозий в сочетании с другими металлами, полупроводниками или диэлектриками. Несмотря на то, что магнитные свойства Du представлены в классических работах и ряде монографий (см., например, [1–3]), постоянно предпринимаются новые исследования, приводящие к более глубокому пониманию магнетизма этого металла [4]. В частности, наряду с описанными ранее магнитными фазами — парамагнитной ($T > 175$ К), спиральной антиферромагнитной ($T_N = 175$ К) и ферромагнитной ($T_C = 85$ К) — в [4] был выявлен ряд новых фаз. Сложная фазовая диаграмма и высокая чувствительность температур фазовых переходов к качеству кристалла приводят к существенным изменениям магнитных свойств диспрозия при переходе к малым частицам или тонкопленочным наноструктурам. Например, в [5] было прослежено влияние размеров и деформации кристаллитов на характер фазовых переходов в мелкокристаллических образцах Du , а в [6] показано, что в наночастицах Du , распределенных в алюминиевой пленке, не возникает спиральной структуры. В [7] продемонстрировано возрастание или уменьшение T_C в эпитаксиальных пленках Du , включенных в сэндвичи $Y-Du-Y$ и $Er-Du-Er$, которое объяснялось растяже-

нием (в случае Y с большей постоянной решетки) или сжатием (в случае Er с меньшей постоянной решетки) монокристалла вдоль c -оси.

Одним из факторов, влияющих на магнитное состояние слоев Du в пленочных структурах и сверхрешетках, может быть взаимодействие с соседними слоями $3d$ -металлов или включениями $3d$ -атомов в слое Du . Слоистым структурам $Du-3d$ -металл посвящено значительное число работ (см., например, [8–10]). Ранее нами было обнаружено сильное влияние низких концентраций (~ 0.05) примесей Ni в слое Du на температурные и спектральные зависимости линейного по намагниченности магнитного кругового дихроизма (МКД) в двухслойных пленках $Du_{1-x}Ni_x-Ni$ [11]. В интервале температур 80–300 К слой Du , содержащий примеси Ni в концентрациях x , не превышающих несколько массовых процентов, вносил постоянный, не зависящий от температуры вклад в МКД, приблизительно равный величине МКД, наблюдаемой в однослойной пленке $Du_{1-x}Ni_x$ только при температурах, меньших температуры перехода в ферромагнитное состояние T_C . Такое температурное поведение МКД было объяснено ферромагнитным упорядочением диспрозия под влиянием двух факторов: атомов Ni , распределенных по всей глубине слоя Du , и спиновой системы соседнего слоя переходного металла. В настоящей работе исследованы полевые зависимости полярного и меридионального эффектов Керра (ПЭК и МЭК) и предложен механизм, объясняющий влияние Ni на магнитное состояние слоя Du .

2. Методика и результаты

Образцы изготавливались на модернизированной установке молекулярно-лучевой эпитаксии „Ангара“ термическим распылением Ni и Du на стеклянные подложки при температуре 250°C. Скорости распыления компонентов составляли ~ 0.05 и 2 \AA/s для Ni и Du соответственно. На подложку наносился слой Ni, а затем одновременно распылялись Ni и Du. В одном цикле напыления получались три образца: однослойные пленки Ni и $Du_{1-x}Ni_x$ и двухслойная пленка $Ni-Du_{1-x}Ni_x$. Распределение компонентов по площади и глубине образцов определялось с помощью Оже-электронной спектроскопии.

В качестве основного метода исследования магнитного состояния образцов использовался МКД в связи с его высокой чувствительностью и отсутствием эффекта в подложке. МКД измерялся в спектральном диапазоне 350–650 nm как разность оптических плотностей образца $\Delta D = D_+ - D_-$ для волн, поляризо-

ванных соответственно по правому и левому кругу по отношению к направлению внешнего магнитного поля. Магнитное поле было направлено нормально плоскости образцов и составляло 4.5 kOe. Точность измерения МКД составляла $\pm 10^{-4}$. Охлаждение образцов проводилось в проточном криостате в потоке азота в интервале температур 80–300 K, температура контролировалась с точностью ± 1 K. При комнатной температуре измерялись полевые зависимости МЭЖ в магнитном поле до 4.0 kOe, направленном параллельно плоскости образцов, и ПЭЖ в магнитном поле до 14 kOe, направленном по нормали к плоскости образцов.

На рис. 1 показаны Оже-профили двухслойных пленок Ni–Du и $Ni-Du_{1-x}Ni_x$. В первом случае по всей глубине пленки диспрозия, кроме интерфейса $\sim 30 \text{ \AA}$, включения никеля отсутствуют. Во втором случае Ni распределен равномерно по всей глубине слоя Du. Концентрация Ni варьировалась от 0.005 до 0.06. Проблема окисления Du была подробно рассмотрена нами в [11], где было показано, что Du по всей глубине, кроме приповерхностного слоя $\sim 40 \text{ \AA}$, находится в металлическом состоянии. Это подтверждается и величиной сопротивления $\sim 5 \cdot 10^{-5} \Omega \cdot \text{cm}$, и высоким оптическим поглощением $\sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$.

В [11] были приведены спектральные зависимости МКД однослойных пленок Du и Ni для 93 и 300 K и показано, что при 93 K величина МКД Du сравнима с величиной МКД Ni, но знаки эффекта для двух металлов противоположны. При повышении температуры измерения до 300 K величина МКД однослойной пленки Du уменьшалась на порядок. Особенности спектра МКД Du удовлетворительно согласовывались с результатами экспериментального исследования [12,13] и расчетов [14] оптической проводимости массивного Du. Подобная картина наблюдается для пленок $Du_{1-x}Ni_x$ и для слоя Du в двухслойных пленках Du–Ni (после вычитания МКД слоя Ni из суммарного измеренного МКД).

На рис. 2 приведены температурные зависимости МКД пленок Ni, Du, $Du_{1-x}Ni_x$, Du–Ni и $Du_{1-x}Ni_x-Ni$. Длина световой волны для всех случаев одинакова и равна 525 nm. Для однослойных пленок Du и $Du_{1-x}Ni_x$ кривые близки друг другу и их общий характер соответствует температурной зависимости намагнитченности мелкокристаллических образцов Du, исследованных в [5]. Наблюдается возрастание на порядок МКД вблизи ~ 120 K, соответствующее фазовому переходу Du в ферромагнитное состояние. Особенность вблизи T_N , как и в [5], отсутствует. МКД двухслойной пленки Du–Ni представляет собой сумму эффектов однослойных пленок Ni и Du. Совершенно иная ситуация имеет место для двухслойных пленок $Du_{1-x}Ni_x-Ni$: при величине x , превышающей пороговое значение ~ 0.05 , температурный ход МКД совпадает с ходом МКД однослойной пленки Ni, а его величина близка к сумме МКД пленки Ni и пленки Du при $T < T_C$. Таким образом, в последнем

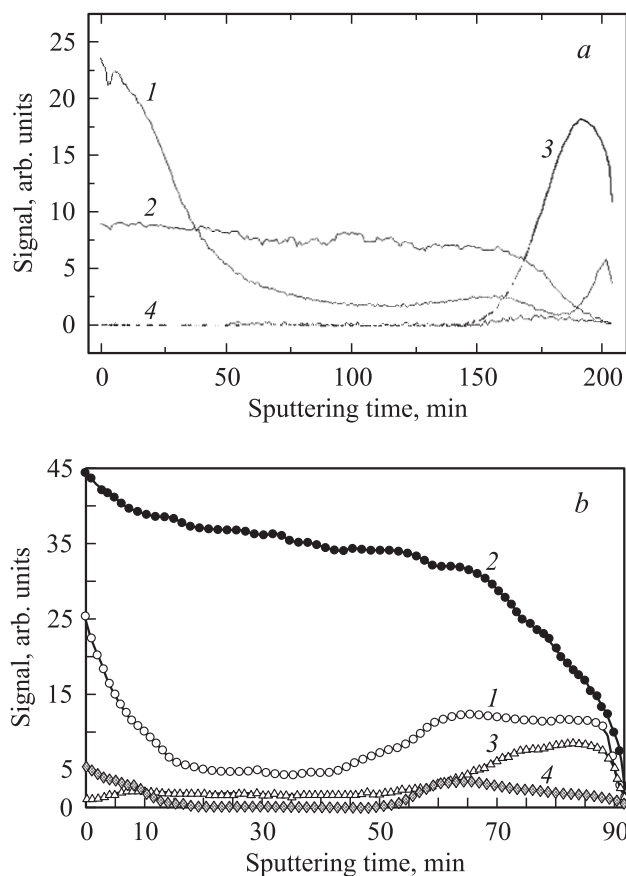


Рис. 1. Оже-профили распределения основных элементов по глубине двухслойных пленок. *a* — Ni–Du, энергия электронного пучка 3 keV, ток 10–40 nA, ионное распыление при энергии 3 keV и токе 400 nA; *b* — Ni–Du_{0.95}Ni_{0.05}, энергия электронного пучка 3 keV, ток 100 nA, ионное распыление при 3 keV и токе 600 nA. Кривые соответствуют следующим элементам: 1 — кислород, 2 — диспрозий, 3 — никель, 4 — углерод.

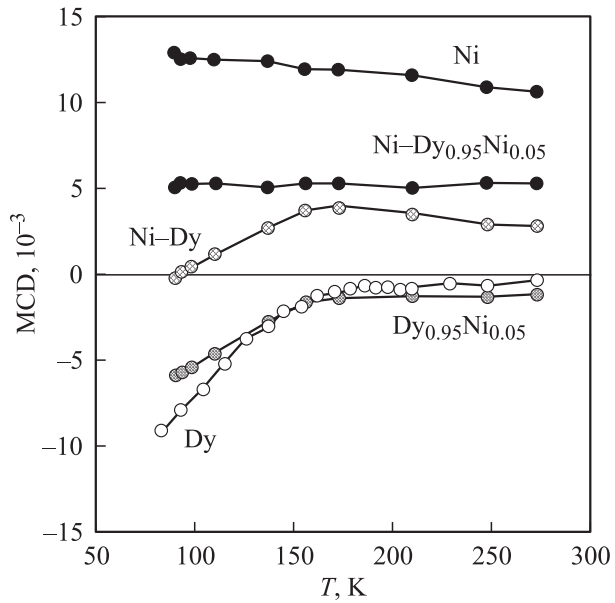


Рис. 2. Температурные зависимости МКД в пленках Ni, Dy, $Dy_{0.95}Ni_{0.05}$, Ni-Dy и Ni- $Dy_{0.95}Ni_{0.05}$ в магнитном поле 4.5 кОе на длине волны 525 нм.

случае наблюдается необычная температурная зависимость МКД. Можно было бы предположить, что Dy в рассматриваемой ситуации влияет на МКД Ni, уменьшая его величину. Однако специальный эксперимент по окислению показал, что полное окисление слоя Dy (контрольная однослойная пленка Dy окислялась до Dy_2O_3) при сохранении слоя Ni в металлическом состоянии приводит к восстановлению величины МКД, равной МКД контрольной однослойной пленки Ni. Значительный вклад слоя $Dy_{1-x}Ni_x$ в суммарную величину МКД двухслойной пленки $Dy_{1-x}Ni_x-Ni$ может быть связан с ферромагнитным упорядочением этого слоя при температурах, намного превышающих T_C соответствующей однослойной пленки. Знак этого вклада соответствует знаку МКД Dy при $T < T_C$. Исходя из этого факта можно предположить, что магнитные моменты слоев Ni и $Dy_{1-x}Ni_x$ направлены параллельно.

В отличие от МКД, который отражает интегральный эффект от обоих слоев в двухслойной структуре, измерения МЭК и ПЭК дают представление о каждом слое в отдельности. На рис. 3, *a, b* приведены полевые зависимости МЭК для двухслойной пленки Ni- $Dy_{0.95}Ni_{0.05}$ при наблюдении как со стороны слоя Ni, так и со стороны слоя $Dy_{1-x}Ni_x$. В обоих случаях наблюдается петля гистерезиса, характерная для ферромагнитного состояния. Как и для МКД, знак МЭК в слое $Dy_{1-x}Ni_x$ противоположен знаку МЭК слоя Ni. Для однослойных пленок Dy и $Dy_{1-x}Ni_x$ МЭК при комнатной температуре не наблюдается. На рис. 3, *c* показана полевая зависимость ПЭК двухслойной пленки при падении света на образец со стороны слоя $Dy_{1-x}Ni_x$. Наряду с сигналом от верхнего слоя наблюдается значительно

ослабленный сигнал противоположного знака от нижележащего слоя Ni, чем объясняется форма полученной кривой. При наблюдении МЭК при наклонном падении света на образец для *s*-поляризованной волны сигнал от нижележащих слоев не регистрируется из-за сильного отражения *s*-компоненты первой поверхностью. Гистерезис отсутствует. Это обстоятельство, а также сильное различие полей магнитного насыщения в случаях МЭК и ПЭК свидетельствуют о наличии в обоих слоях анизотропии типа легкая плоскость и существенном различии намагниченности слоев.

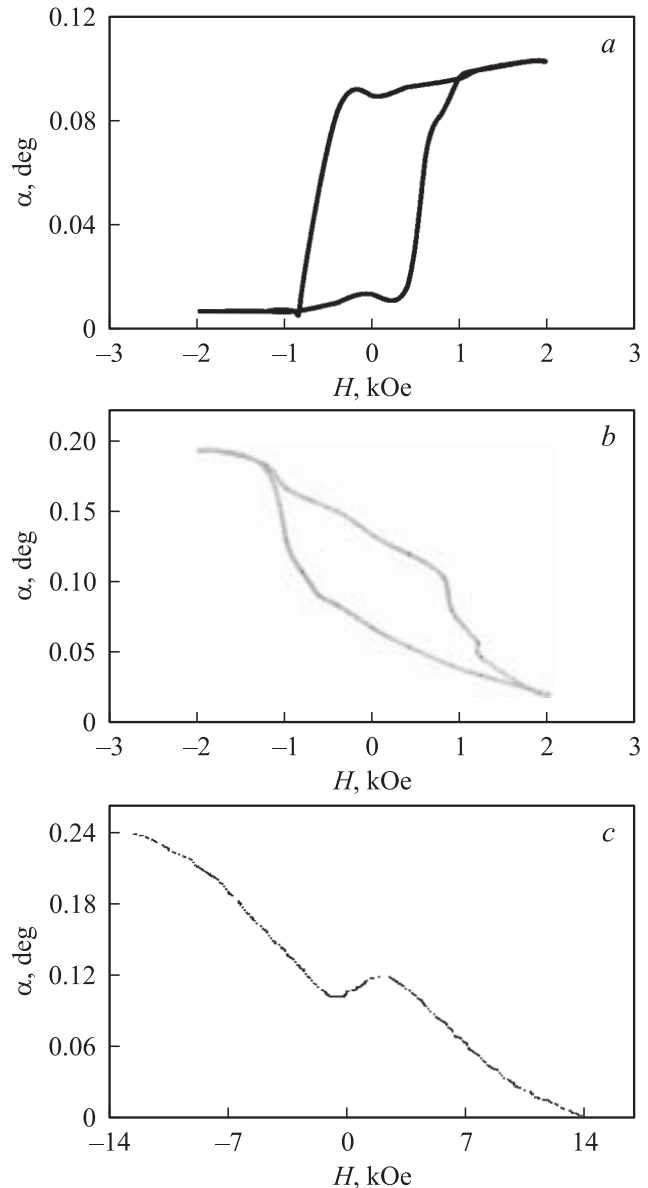


Рис. 3. Полевые зависимости эффекта Керра в пленке Ni- $Dy_{0.95}Ni_{0.05}$. *a* — МЭК при отражении света от слоя Ni; *b* — МЭК при отражении *s*-поляризованной световой волны от слоя $Dy_{0.95}Ni_{0.05}$ (длина волны 450 нм, угол падения света 45°), *c* — ПЭК при отражении света от слоя $Dy_{0.95}Ni_{0.05}$, длина волны 500 нм (нормальное падение).

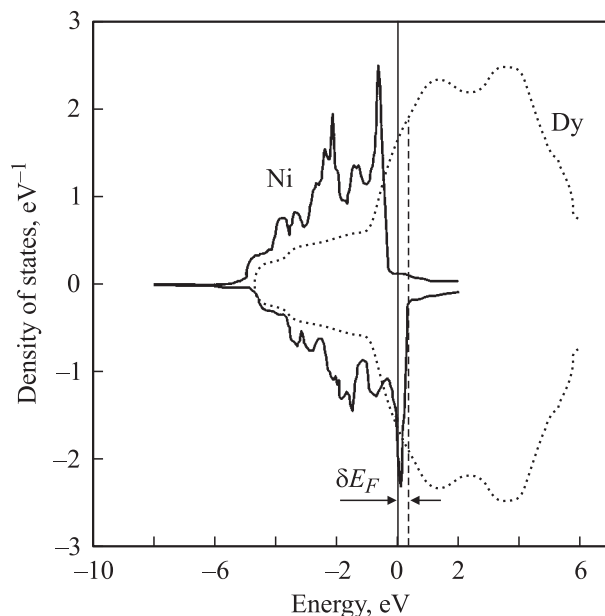


Рис. 4. Схема плотностей состояний Dy (пунктир) и Ni [18] (сплошная линия). Показано смещение уровня Ферми за счет перетекания электронов из слоя никеля.

3. Обсуждение результатов

Наблюдаемые полевые зависимости ПЭК и МЭК позволяют отвергнуть предположение о магнитоэлектрическом происхождении упорядочения в слое $Du_{1-x}Ni_x$. Кроме того, если бы слой Dy просто намагничивался в магнитном поле слоя Ni, это должно было бы происходить и в двухслойной пленке Ni–Dy, и непонятно, почему этого не происходит. По-видимому, в рассматриваемом случае нельзя говорить также и об изменении магнитного состояния слоя $Du_{1-x}Ni_x$ в двухслойной пленке вследствие магнитоэлектрики подобно механизму, предложенному в [7], так как эти пленки не являются эпитаксиальными. Если бы изменение параметров структуры, приводящее к магнитному упорядочению, происходило из-за включения атомов Ni, аналогичный эффект должен был бы наблюдаться и в однослойных пленках $Du_{1-x}Ni_x$, чего в действительности нет.

Магнитная поляризация $4f$ -электронов редкоземельных металлов на поверхности $3d$ -металлов обсуждалась ранее теоретически и наблюдалась экспериментально в очень тонких слоях. В частности, в [15] наблюдалась поляризация спинов $4f$ -электронов в моноатомных пленках Dy, осажденных на монокристалл или пленку $3d$ -металла. Спиновые моменты Dy при этом (в отличие от рассматриваемых здесь пленок) были направлены антипараллельно моменту поверхности кристалла или слоя $3d$ -металла. Сильная зависимость температурного поведения МКД слоя $Du_{1-x}Ni_x$ от концентрации Ni позволяет предположить, что в рассматриваемом случае включения атомов никеля и их связь со сплошным магнитоупорядоченным слоем Ni ответственны за рас-

пространение влияния Ni на магнитное состояние Dy на большую глубину слоя Dy.

Как известно, магнитная структура тяжелых редкоземельных металлов, в том числе диспрозия, определяется в основном обменным взаимодействием электронов проводимости с $4f$ -электронами [4]. При внедрении атомов Ni в слой Dy происходят изменения в системе электронов проводимости. Мы предлагаем следующую модель этих изменений. В духе модели виртуального кристалла опишем плотность состояний сплава $Du_{1-x}Ni_x$ в виде

$$N(E) = (1 - x)N_{Dy}(E) + xN_{Ni}(E).$$

Для Dy плотность состояний в окрестности уровня Ферми определяется в основном $5d$ -электронами с малым подмешиванием $6s$, p -электронов [16,17]. Для Ni имеют место узкий заполненный пик для „+“ электронов (спин вверх) и узкий незаполненный пик для „–“ электронов (спин вниз) [18]. Схема плотности состояний сплава показана на рис. 4, при построении которого мы приравнивали уровни Ферми обоих компонентов сплава. Ввиду наличия слоя Ni и диффузии атомов Ni в глубь сплава $3d$ -электроны Ni перетекают в сплав, уровень Ферми растет и попадает на узкий пик электронов со спином вниз, т. е. $N(E_F)$ увеличивается. При достижении критической концентрации возможно выполнение критерия Стонера и появление магнитных свойств в системе Ni– $Du_{0.95}Ni_{0.05}$ при комнатной температуре. В то же время без дополнительного слоя Ni роста плотности состояний на уровне Ферми не происходит, а в двухслойной пленке Ni–Dy перетекание $3d$ -электронов Ni имеет место, но нет особенности плотности состояний в чистом Dy, и поэтому магнитные свойства Ni–Dy незначительно отличаются от свойств Dy.

4. Заключение

Таким образом, Ni как компонент сплава „подготавливает“ плотность состояний в сплаве с особенностями вблизи уровня Ферми, а диффузия атомов Ni из нижнего слоя приводит к заполнению этой особенности и изменению магнитных свойств верхнего слоя при выполнении критерия Стонера.

Список литературы

- [1] D.R. Behrendt, S. Legvold, F.H. Spedding. Phys. Rev. **109**, 1544 (1958).
- [2] К.П. Белов. Редкоземельные магнетики и их применение. Наука, М. (1980). 239 с.
- [3] С.А. Никитин. Магнитные свойства редкоземельных металлов и сплавов. Изд-во МГУ, М. (1989). 248 с.
- [4] A.S. Chernyshov, A.O. Tsokol, A.M. Tishin, K.A. Gschneidner, jr., V.K. Pecharsky. Phys. Rev. B **71**, 184410 (2005).

- [5] Ч.Я.Мулоков, Г.Ф. Корзникова, С.А. Никитин. ФТТ **37**, 2481 (1995).
- [6] N.B. Shevchenko, J.A. Christodoulides, G.C. Hadjipanayis. Appl. Phys. Lett. **74**, 1478 (1999).
- [7] C. Dufour, K. Dumensil, Ph. Mangin, G. Marchal, M. Hennion. J. Magn. Magn. Mater. **156**, 425 (1996).
- [8] J. Tappert, J. Jungermann, B. Scholz, R.A. Brand, W. Keune. Appl. Phys. **76**, 6293 (1994).
- [9] K. Yoden, N. Hosoito, K. Kawaguchi, K. Mibu, T. Shinjo. Jap. J. Appl. Phys. **27**, 1680 (1988).
- [10] J. Tappert, W. Keune, R.A. Brand, P. Vulliet, J.P. Sanches, T. Shinjo, J. Appl. Phys. **80**, 4503 (1996).
- [11] И.С. Эдельман, В.В. Марков, С.Г. Овчинников, А.Е. Худяков, В.Н. Заблуда, В.Г. Кеслер, Г.В. Бондаренко. ФТТ **45**, 1423 (2003).
- [12] Ю.В. Князев, М.М. Носков. ФММ **30**, 214 (1970).
- [13] J.L. Erskine, G.A. Blake, C.J. Flaten. Opt. Soc. Amer. **64**, 1332 (1974).
- [14] Т.А. Матвеева, Р.Ф. Егоров. ФММ **51**, 950 (1981).
- [15] C. Carbone, R. Rochov, L. Braicovich, R. Jungblut, T. Kachel. Phys. Rev. B **41**, 3866 (1990).
- [16] S.C. Keeton, T.L. Loucks. Phys. Rev. **168**, 672 (1968).
- [17] W. Schneider, S.L. Molodtsov, M. Richter, Th. Grantz, P. Engelmann, C. Laubschat. Phys. Rev. B **57**, 14930 (1998).
- [18] A.I. Lichtenstein, M.I. Katsnelson. Phys. Rev. Lett. **87**, 67205 (2001).