

Переход в квазидвумерное магнитное состояние пленок Pd–Fe

© Р.М. Мирзабабаев

Газиантепский университет,
27310 Газиантеп, Турция
E-mail: mirza@gantep.edu.tr

(Поступила в Редакцию 3 августа 2000 г.
В окончательной редакции 24 ноября 2000 г.)

Измерены мессбауэровские спектры пленок Pd–Fe различной толщины и концентрации железа. В них в широком интервале температур наблюдаются флуктуации спинов, связанные с переходом в квазидвумерное магнитное состояние. Зависимости величин магнитных полей и температур Кюри от толщины пленок хорошо согласуются с результатами теории скейлинга. Из-за дальнего действия обменных связей пленки с концентрациями железа 14.4 и 7.8 at.% переходят в квазидвумерное состояние при толщинах в несколько тысяч ангстрем.

Известно, что изотропные двумерные гейзенберговские магнетики не обладают спонтанной намагниченностью при температурах $T > 0$ [1]. Напротив, в реальных, достаточно толстых 3D пленках магнитный порядок существует. Обычно свойства квазидвумерных пленок, т. е. систем, занимающих промежуточное между ними положение, не связывают с флуктуациями спинов всей квази-2D системы в целом. Этим можно объяснить тот факт, что релаксационные явления, наблюдаемые в таких объектах с помощью эффекта Мессбауэра, либо оставляют без интерпретации [2], либо сводят к наличию каких-то посторонних фаз [3], либо, чаще всего, относят на счет несовершенства технологии изготовления пленок, полагая, что в них образуются не связанные друг с другом суперпарамагнитные кластерные образования (см., например, [4,5]).

В настоящей работе представлены результаты мессбауэровских исследований пленок Pd–Fe различной толщины и концентрации железа. Благодаря особенностям сплава Pd–Fe пленки, изготовленные из этого материала, при достаточно большой толщине, исключая вероятность появления в них отдельных микрокристаллических образований, ведут себя как ультратонкие магнитные пленки.

1. Теория

В отсутствие внешнего магнитного поля вектор намагниченности трехмерного магнетика располагается вдоль его легкой оси. С уменьшением одного из размеров кристалла энергия анизотропии уменьшается и при достаточно малой толщине L может сравниться с энергией тепловых флуктуаций kT даже при комнатной температуре. В этом случае намагниченность не фиксируется вдоль легкой оси, а флуктуирует с частотой τ_s^{-1} , зависящей от толщины [6],

$$\tau_s = \tau_0 \exp(KL/kT), \quad (1)$$

где $\tau_0 \approx 10^{-9} - 10^{-11}$ s, k — постоянная Больцмана, K — константа анизотропии.

Намагниченность пленки, усредненная по времени, много большему, чем время релаксации $t \gg \tau_s$, равна нулю [7]. Однако если $t \leq \tau_s$, то измеряемая намагниченность определяется выражением

$$M(L, T) \cong M_s(1 - kT/2KL), \quad (2)$$

где M_s — намагниченность 3D магнетика.

В этом случае намагниченность и, следовательно, температура Кюри T_c оказывается зависящими от толщины пленки. Масштаб времен t , характерный для эффекта Мессбауэра, задается частотой ларморовой прецессии $1/\tau_L = \omega_L = -\mu H/I$ и временем жизни возбужденных ядер τ [8].

Согласно теории скейлинга, в критической области шкала расстояний задается длиной корреляции флуктуации спинов $\xi(T)$ [9]

$$\xi(T) = \xi_0[(T - T_c)/T_c]^{-\nu}, \quad (3)$$

где ξ_0 — амплитуда корреляционной длины, ν — критический показатель.

За начало критических явлений принимается момент, когда длина корреляции сравнивается с физической толщиной пленок $\xi(T) \approx L$. Размерность и свойства пленок определяются соотношением между толщиной L и амплитудой корреляции ξ_0 , которая в свою очередь зависит от характера взаимодействия между спинами. Исходя из этого критические явления могут быть вызваны различным образом.

Если радиус обменного взаимодействия настолько велик, что $\xi_0 \geq L$, то тогда даже достаточно толстая пленка ведет себя как квази-2D система. Если обменное взаимодействие является близкодействующим, то пленку нужно сильно утоньшать вплоть до выполнения неравенства $\xi(T) > L$. Показателем того, что пленка переходит из 3D состояния в квази-2D, является сдвиг ее температуры упорядочения [9]

$$[T_c(\infty) - T_c(L)]/T_c(\infty) = C/L^\lambda, \quad (4)$$

где λ — показатель сдвига.

Сплавы Pd–Fe относятся к неупорядоченным магнетикам, в которых примесные атомы железа распределены случайным образом. Они намагничивают палладиевую матрицу и тем самым создают вокруг себя ферромагнитный потенциал, действующий на больших по сравнению с постоянной решетки расстояниях [10]:

$$V(T) = V_0 \frac{R(T)}{r} \exp\left(-\frac{r}{R(T)}\right) + V_1 \frac{\cos(2K_F r)}{(K_F r)^3}, \quad (5)$$

где r — расстояние между магнитными примесями, V_0 и V_1 — масштабные множители, K_F — фермиевский волновой вектор, $R(T)$ — радиус поляризации.

Чем ниже температура, тем больше $R(T)$. При достаточно низкой температуре экспоненциальный член превосходит осциллирующую часть, и примесные атомы упорядочиваются ферромагнитно. Несмотря на случайное распределение атомов в матрице, величины полей при этом одинаковы на всех ядрах железа [11]. Это означает, что радиус поляризации значительно больше среднего расстояния между примесями. Следовательно, в сплаве Pd–Fe переход в квазидвумерное состояние должен происходить при больших толщинах, чем у упорядоченных магнетиков.

2. Эксперимент

Ширина линии излучения источника $^{57}\text{Co}(\text{Cr})$ была равна 2Г. Измерения проводились в интервале от 4.2 К до комнатной температуры. В интервале 150–185 К стабильность температуры выдерживалась с точностью ± 1 К, в остальном диапазоне — с точностью ± 0.1 К. Температуры переходов были получены из мессбауэровских измерений. Ширины спектров вычислялись на ЭВМ на основе модели, предложенной в [12].

Пленки Pd–Fe были получены в два этапа. На первом этапе сплавились образцы обогащения 92% по изотопу ^{57}Fe и с концентрацией железа 14.40 ± 0.05 at.% и 7.85 ± 0.05 at.% [13]. На втором этапе из сплавов напылялись пленки [14]. Всего было изготовлено 11 пленок различной толщины и концентрации. Концентрации железа в пленках оказались равными 14.4 ± 0.5 at.% и 7.8 ± 0.5 at.%, что с хорошей точностью совпало с концентрациями исходных образцов.

3. Результаты

Сравним мессбауэровские спектры 3D сплава (рис. 1) и пленки Pd–Fe толщиной 3480 Å (рис. 2) одной и той же концентрации железа 7.85 at.%. С ростом температуры 3D спектры сужаются, линии стягиваются к центру из-за уменьшающейся намагниченности. Вблизи перехода спектры представляют собой незначительно уширенную одиночную линию, являющуюся суперпозицией неразрешенных зеемановских линий. Аналогичные результаты были получены для концентрации 14.4 at.%.

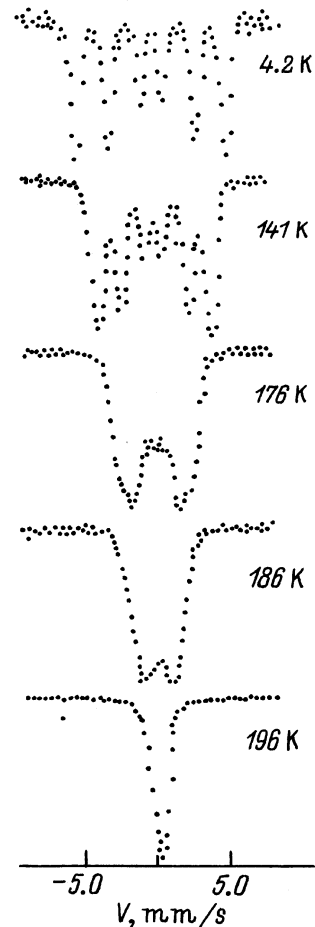


Рис. 1. Мессбауэровские спектры массивного образца сплава Pd–Fe с концентрацией железа 7.85 at.%.

Спектры пленок резко отличаются от спектров массивных образцов. Им соответствуют меньшие магнитные поля и температуры переходов. В интервале нескольких десятков градусов спектры представляют собой суперпозицию плохо разрешенных парамагнитных и зеемановских линий. С ростом температуры интенсивность магнитных линий падает, а парамагнитная компонента растет.

Одно из условий, необходимых для наблюдения магнитного расщепления $\tau\omega_L \geq 1$, определяется ядерно-физическими константами резонансного изотопа и не зависит от размерности магнитной системы [15]. Другое условие состоит в том, что за время τ_s , в течение которого поле не меняет своего направления, момент ядра должен сделать вокруг него несколько оборотов $\tau_s\omega_L \geq 1$ [8]. Второе условие, как видно из (1), зависит от размерности магнитной системы.

В 3D системах условие $\xi(T) \geq L$ начала критических явлений реализуется только при $T \rightarrow T_c$. Поэтому различие в значениях T_c , получаемых различными методами, невелико и в упорядоченных магнетиках составляет $T - T_c = 10^{-2} - 10^{-3}$ К. Иными словами, температуры перехода являются константами. В квази-2D системах

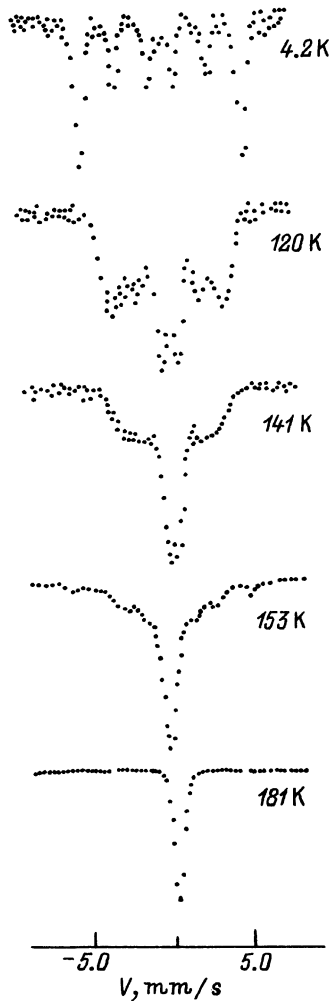


Рис. 2. Мессбауэровские спектры пленки Pd-Fe толщиной 3480 Å с концентрацией железа 7.85 at.%.

условие $\xi(T) \geq L$ начинает выполняться при температурах, меньших, чем T_c . Чем тоньше пленка и чем больше радиус обменного взаимодействия, тем шире область температур $(T - T_c)$, в которой происходят критические явления, и соответственно тем ниже получаемые из измерений температуры переходов.

При низких температурах, когда $\tau_s \omega_L \geq 1$, спектры пленок состоят только из линий магнитного расщепления. Они выглядят так, как если бы спины были "заморожены", как в 3D системах. О флуктуации спинов в этой области также свидетельствует тот факт, что температуры перехода этих же самых пленок, измеренные методом магнитной восприимчивости, на несколько десятков градусов отличаются от мессбауэровских [2]. Из-за того что шкала времен магнитных измерений составляет секунды, условие $\tau_s \omega_L \geq 1$ наступает при других температурах.

С ростом температуры происходит выравнивание частот $\tau_s \omega_L \approx 1$, и появляются парамагнитные линии. При изменении соотношения на противоположное $\tau_s \omega_L \ll 1$

магнитное расщепление исчезает. Остается только парамагнитная линия.

Температурные зависимости ширин спектров (полей на ядрах) показаны на рис. 3 и 4. Видно, что у всех пленок одной и той же концентрации поля меняются с приведенной температурой одинаковым образом, независимо от толщины, и совпадают с 3D образцом. Отсюда следует, что сдвиг температур перехода и изменения полей вызваны одной и той же причиной, а именно флуктуациями спинов, которые в свою очередь являются

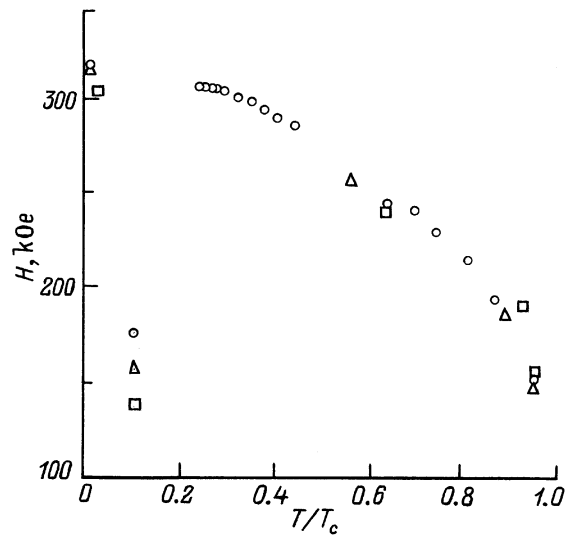


Рис. 3. Ширины (сверхтонкое магнитное расщепление) спектров массивного образца (1), пленок толщиной 120 (2) и 350 Å (3). Концентрация железа 14.4 at.%.

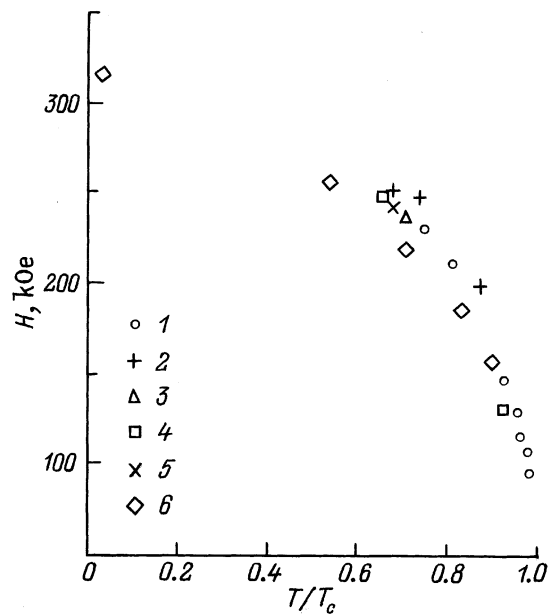


Рис. 4. Ширины (сверхтонкое магнитное расщепление) спектров массивного образца (1), пленок толщиной 920 (2), 1100 (3), 1390 (4), 1620 (5) и 3480 Å (6). Концентрация железа 7.85 at.%.

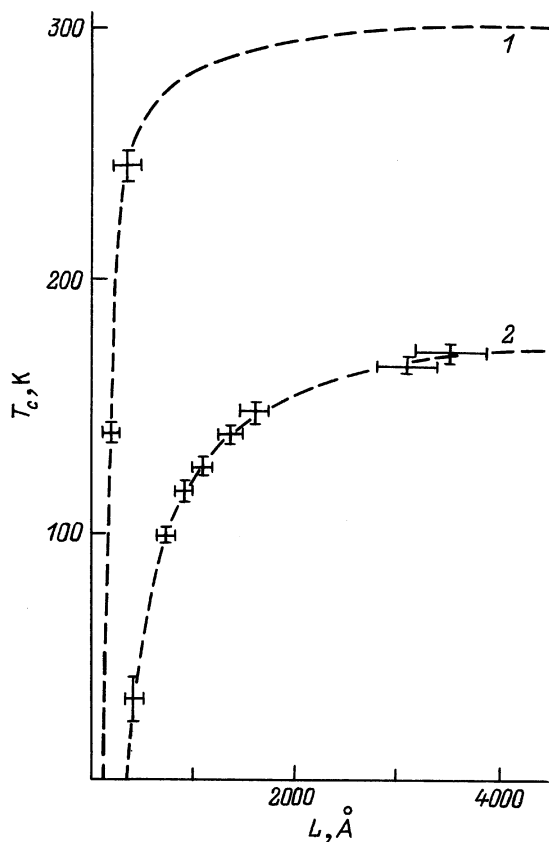


Рис. 5. Температуры магнитного фазового перехода пленок Pd–Fe различной толщины и концентрации железа. Концентрация железа в сплаве: 14.4 (1) и 7.85 at.% (2).

результатом перехода пленок в квазидвумерное состояние. Очевидно также, что характер обменных связей, радиус поляризации R , амплитуда ξ_0 не зависят от размерности магнетика.

В то же время сравнение рис. 3 и 4 указывает на то, что эти параметры зависят от концентрации. С ростом концентрации величины R и ξ_0 уменьшаются. Как следствие, критические толщины, соответствующие началу перехода в двумерное состояние, также уменьшаются. Добавим, что эти результаты лишней раз свидетельствуют о высоком качестве напыления.

Зависимости температур перехода от толщин показаны на рис. 5. Результаты хорошо согласуются с выражением (4), устанавливающим связь между T_c и L при переходе в квазидвумерное магнитное состояние. Экстраполяция данных методом наименьших квадратов дает следующие значения для параметров пленок. Для концентрации железа 14.4 at.%: $\lambda_1 = 0.86$, $C_1 = 33.9 \text{ \AA}$. Для концентрации 7.8 at.%: $T_c(\infty) = 193 \pm 7 \text{ K}$, $\lambda_2 = 0.95 \pm 0.15$, $C_2 = 255 \pm 5 \text{ \AA}$.

Вычисляемое из результатов тонкопленочных измерений значение T_c для $n = 7.8 \text{ at.}\%$ очень близко к $T_c = 192 \pm 0.1 \text{ K}$, которое было получено из измерений

массивного сплава. Это также свидетельствует о правильности модели, описываемой выражением (4).

Экспериментальные значения показателей сдвига λ близки к теоретически вычисленным на основе модели усредненного поля, которое равно единице [9]. Они совершенно не согласуются со значением $\lambda = 1.56$, вычисленным в рамках модели Изинга, и со значениями $\lambda = 1.6-1.7$, экспериментально полученными в пленках железа и никеля [5,16]. В данном случае сказывается особенность природы ферромагнетизма в Pd–Fe, в частности наличие дальнедействующих связей, обусловленных поляризацией матрицы. Такие связи значительно лучше соответствуют модели усредненного поля, чем модели Изинга, в которых принимаются во внимание только ближайшие в решетке соседи.

Таким образом, пленки Pd–Fe переходят в квазидвумерное состояние при толщинах в несколько тысяч ангстрем. Связано это с тем, что обменное взаимодействие происходит на больших по сравнению с постоянной решетки расстояниях. Пленки проявляют суперпарамагнитные свойства подобно тому, как это имеет место в микрокристаллах квазиулевого размерности. Флуктуации спинов связаны не с наличием неоднородностей в структуре, а с самой природой квази-2D магнитных систем.

Список литературы

- [1] N.D. Mermin, H. Wagner. Phys. Rev. Lett. **17**, 1133 (1966).
- [2] J.R. Long, R.W. Mattozzi. J. Appl. Phys. **55**, 6, 2359 (1984).
- [3] R.D. McGrath, A. Levy, J.C. Walker. Hyperfine Interaction **10**, 801 (1981).
- [4] S. Shinjo, J. Cunningham, R. Du, N.B. Salamon, C.P. Flynn. J. Magn. Magn. Mater. **54**, 773 (1986).
- [5] S. Duncan, A.H. Owens, R.J. Semper, J.C. Walker. Hyperfine Interaction **4**, 886 (1978).
- [6] P.F. Garcia, A.D. Meinhardt. Appl. Phys. Lett. **47**, 178 (1985).
- [7] S. Morup. Hyperfine Interaction **60**, 959 (1990).
- [8] И.П. Суздальев. Динамические эффекты в гамма-резонансной спектроскопии. Атомиздат. М. (1979). 192 с.
- [9] M.E. Fisher. J. Vac. Sci. Technol. **10**, 5, 665 (1973).
- [10] И.Я. Коренблит, Е.Ф. Шендер. УФН **126**, 2, 233 (1978).
- [11] P. Craig, B. Mozer. Phys. Rev. Lett. **14**, 22, 895 (1965).
- [12] B. Window. J. Phys. E: Sci. Instrum. **4**, 5, 401 (1971).
- [13] Р.М. Мирзабабаев. Изв. РАН. Металлы **2**, 121 (1994).
- [14] Р.М. Мирзабабаев. Неорган. материалы **30**, 2, 192 (1994).
- [15] А.М. Афанасьев, Ю.М. Каган. ЖЭТФ **45**, 5, 1660 (1963).
- [16] H. Lutz, O.D. Gunton, H.K. Shumann, J.E. Grow, T. Mihatisin. Solid State Commun. **14**, 11, 1075 (1974).