

## Ультратонкие пленки Co/Cu(110) как решетка ферромагнитных гранул с дипольным взаимодействием

Е. З. Мейлихов<sup>1)</sup>, Р. М. Фарзетдинова

Институт молекулярной физики Российского научного центра “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 29 декабря 2001 г.

Известный эффект появления магнитного порядка в ультратонких пленках Co (с эффективной толщиной в несколько моноатомных слоев) на монокристаллической подложке Cu(100) количественно описывается в модели, согласно которой такая пленка представляет собой решетку трехмерных ферромагнитных гранул с дипольным взаимодействием. Вычислена критическая толщина пленки, при которой происходит ее переход в ферромагнитное состояние, и соответствующая температура Кюри.

PACS: 75.50.Tt, 75.70.Ak

Изучению магнитного упорядочения в ультратонких пленках Fe, Co, Ni посвящено множество экспериментальных работ [1]. Установлено, что при некоторой эффективной толщине пленок в них устанавливается дальний ферромагнитный порядок, однако природа и закономерности этого явления остаются не вполне ясными. Основная трудность обобщения и адекватного описания экспериментальных результатов связана со сложным характером процесса роста таких пленок, морфология и свойства которых очень сильно зависят от множества факторов и, в частности, от типа подложки (материал, кристалличность, ориентация поверхности, ее чистота, температура и т.д.) и условий роста (давление и состав атмосферы, скорость роста, методы испарения материала и т.д.). Для того чтобы результаты были воспроизводимы, в ходе экспериментов необходимо тщательно контролировать и сохранять неизменными множество параметров. Что же касается развития физических представлений о механизме установления магнитного порядка в ультратонких пленках, то очень существенным является контроль топологии таких пленок и, в частности, геометрия и магнитные свойства “островков”, состоящих из атомов Co (Fe, Ni), доля закрытой ими поверхности подложки, строение самой пленки, а также эволюция соответствующих параметров по мере ее роста.

Отметим в этой связи недавнюю работу [2]. В ней показано, что при достаточно высокой (например, 300 K) температуре монокристаллической подложки Cu(110) рост осаждаемой на нее пленки Co происходит путем “естественной литографии”, то есть через образование (более или менее однородно распределен-

ных по площади подложки) зародышей, которые превращаются в эллипсоидальные гранулы с большими осями, ориентированными (с небольшим разбросом  $\sim 5-10^\circ$ ) вдоль осей [001] подложки. С помощью сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) установлено, что в процессе роста пленки размер этих гранул растет, но остаются неизменными не только расстояние между их центрами, но и форма гранул (то есть их эксцентриситет).

Эффективная толщина  $d$  такой, состоящей из гранул, неоднородной пленки равна толщине *однородной* пленки, содержащей то же количество атомов. Именно эффективная толщина  $d$  измеряется в эксперименте (по количеству осажденного на подложку материала) и описывается обычно количеством моноатомных слоев (ML). Эксперимент показывает, что такие пленки становятся ферромагнитными только при их достаточно большой (критической) толщине. Авторы [2] считают критической такую толщину пленки  $d_c$ , при которой ее петля гистерезиса впервые демонстрирует ненулевую коэрцитивность. Согласно их измерениям  $d_c \approx 4.6$  ML, хотя заметная нелинейность магнетопольевой зависимости намагниченности пленки, являющаяся следствием межгранульного взаимодействия, появляется уже при  $d \approx 4$  ML.

Мы полагаем, что описанный процесс перехода в ферромагнитное состояние можно связать с изменением магнитного состояния решетки эллипсоидальных гранул Co с дальнедействующим дипольным взаимодействием. Соответствующая модель рассмотрена ниже.

**Магнитное состояние системы ферромагнитных гранул с дипольным взаимодействием и магнетизм ультратонких пленок.** Рассмотрим систему одинаковых *магнитно-анизотропных* фер-

<sup>1)</sup>e-mail: meilikhovimp.kiae.ru

ромагнитных гранул с магнитными моментами  $\mu$ , центры которых лежат в плоскости  $x, z$  и располагаются в узлах *двумерной прямоугольной* решетки с периодами  $\ell_x, \ell_z$ . Пусть легкие оси гранул, а значит, и их магнитные моменты, также лежат в плоскости  $x, z$ , параллельны друг другу и направлены под углом  $\theta$  к оси  $x$ . Магнитное состояние такой системы с учетом дальнедействующего диполь-дипольного взаимодействия определяется магнитным полем

$$H_d = \sum_{m,n} H_{mn},$$

создаваемым в объеме отдельной гранулы (для определенности – находящейся в начале координат) всеми остальными гранулами. Здесь  $H_{mn}$  – параллельная магнитным моментам гранул компонента поля, которое создается в начале координат гранулой с центром в точке  $(m\ell_x, n\ell_z)$ ,  $m, n$  – целые числа; сумма не включает слагаемого с  $m = n = 0$ .

Энергия взаимодействия выбранной гранулы с магнитным полем  $H_d$  равна

$$W_d = -(\mu/V) \int_V H_d(r) dV, \quad (1)$$

где интегрирование производится по объему центральной гранулы. Основному состоянию системы отвечает та конфигурация магнитных моментов  $\mu_{mn}$  гранул, при которой энергия  $W_d$  минимальна. В нашем случае имеется единственная ферромагнитная конфигурация (магнитные моменты гранул направлены вдоль их больших осей и параллельны друг другу), а для антиферромагнитного состояния системы ограничимся ситуацией, когда магнитные моменты гранул образуют две одинаковые магнитные подрешетки антипараллельных магнитных моментов. Тогда  $\mu_{mn} = \mu \exp[i(\phi_x m + \phi_z n)]$ , где  $\phi_x = \phi_z = 0$  для ферромагнитного состояния; антиферромагнитным состояниям  $S_{10}, S_{01}$  и  $S_{11}$  (см. рис.1) отвечают, соответственно, значения  $(\phi_x = 0, \phi_z = \pi)$ ,  $(\phi_x = \pi, \phi_z = 0)$  и  $(\phi_x = \phi_z = \pi)$ .

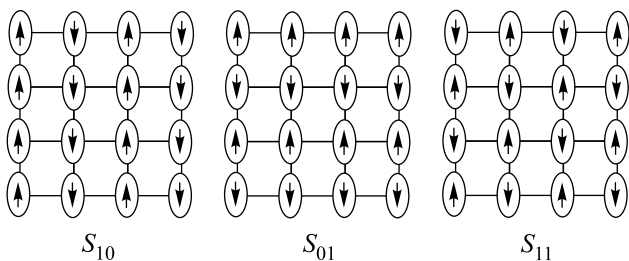


Рис.1. Антиферромагнитные структуры  $S_{10}, S_{01}, S_{11}$  прямоугольных решеток магнитных моментов

Пусть  $i_1$  – абсолютная величина намагниченности каждой из подрешеток (в ферромагнитном состоянии полная намагниченность системы  $i = 2i_1$ , в антиферромагнитном состоянии  $i = 0$ ). В соответствии с теорией среднего поля, энергия диполь-дипольного взаимодействия пропорциональна намагниченности  $i_1$ :  $W_d = -\lambda i_1$ . Из всех рассматриваемых состояний (ферромагнитное и три антиферромагнитных) энергетически наиболее выгодно то, которому отвечает наибольшая величина параметра дипольного взаимодействия  $\lambda$ . Таким образом, для выяснения характера основного состояния рассматриваемой системы достаточно найти и сравнить значения этого параметра, которые соответствуют ферромагнитному и различным антиферромагнитным конфигурациям магнитных моментов гранул.

Что касается намагниченности подрешеток  $i_1$ , то она определяется самосогласованным уравнением теории среднего поля

$$i_1 = i_0 \tanh[\lambda i_1/kT], \quad (2)$$

где  $i_0 = (1/2)\mu N$ ,  $N = 1/\ell_x \ell_z$  – поверхностная концентрация гранул. Это уравнение, как обычно, определяет температуру Кюри системы  $T_C = \lambda i_0/k$ . Следует, однако, заметить, что оно применимо только в том случае, когда различие в энергиях  $W_d$  ферро- и антиферромагнитных состояний системы велико по сравнению с  $kT$ . В противном случае необходимо учитывать тепловые флуктуации магнитного порядка.

Мы ограничимся рассмотрением трехмерных гранул в форме эллипсоидов вращения, оси легкого намагничивания которых направлены вдоль наибольших осей этих гранул. Метод приближенного вычисления энергии  $W_d$  дипольного межгранульного взаимодействия для решетки таких гранул был предложен в работе [3]. Он основан на использовании следующего (обеспечивающего точность  $\sim 1\%$ ) выражения для энергии  $w_d$  дипольного взаимодействия двух эллипсоидальных гранул, центр одной из которых совпадает с началом координат:

$$w_{mn} = -\mu H_{mn},$$

$$H_{mn} = \frac{1}{2} \left[ \frac{\psi_{mn}(a) - \psi_{mn}(-a)}{2a} + \psi'_{mn}(0) \right] - \frac{3}{20} a^2 \left( 1 + \frac{32}{9\pi} \frac{b^2}{a^2} \right) \psi'''_{mn}(0), \quad (3)$$

где

$$\psi_{mn}(x') = \left[ \frac{3\mu(x_0 + x')}{e^3 a^3} \right] (\text{Arth } t - t), \quad (4)$$

$$t = e/\sqrt{1 + \xi}$$

– потенциал магнитного поля, которое создается “центральной” гранулой на оси второй гранулы с центром в точке с координатами  $x_0 = m\ell_x$ ,  $z_0 = n\ell_z \equiv \beta n\ell_x$  ( $x' = x - x_0$ );  $\xi$  – больший корень уравнения  $(z_0/a)^2/(1 - e^2 + \xi) + [(x_0 + x')/a]^2/(1 + \xi) = 1$ ;  $\psi'_{mn}(0) = \partial\psi_{mn}/\partial x'|_{x'=0}$ ,  $\psi'''_{mn}(0) = \partial^3\psi_{mn}/\partial x'^3|_{x'=0}$ .

Таким образом, параметр  $\lambda$ , определяющий тип магнитного порядка для плоской решетки эллипсоидальных магнитных гранул, имеет вид

$$\lambda = 2 \left( \frac{\mu\beta}{\ell_x} \right) \sum_{m,n} (H_{mn}/H_0) e^{i(\phi_x m + \phi_z n)}, \quad (5)$$

$$H_0 = \mu/\ell_x^3,$$

где  $\beta = \ell_z/\ell_x$  – коэффициент растяжения решетки.

Вычисление и сравнение значений параметра дипольного взаимодействия  $\lambda$  для различных магнитных конфигураций магнитных моментов гранул позволяет построить магнитную фазовую диаграмму системы. Зависимости этих параметров для прямоугольных ферро- и антиферромагнитных решеток эллипсоидальных гранул от угла наклона их магнитных моментов представлены на рис.2. Примеры магнитных фазовых диаграмм для двух решеток эллипсоидальных гранул с разной величиной мас-

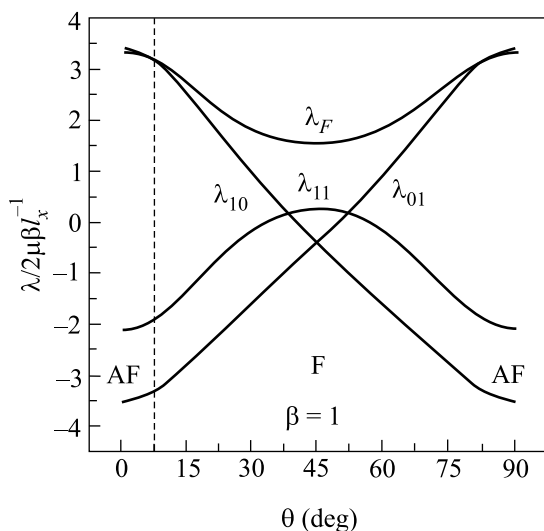


Рис.2. Зависимости параметров дипольного взаимодействия для прямоугольных ферро- и антиферромагнитных решеток гранул от угла наклона их магнитных моментов. Эллипсоидальные гранулы:  $e = 0.95$ ,  $\ell_x/a = 3$

штабного отношения  $\ell_x/a$  приведены на рис.3. При достаточно малой величине этого отношения существуют решетки, основное состояние которых ферромагнитно даже при  $\theta = 0$  (например, при  $\ell_x/a = 2.5$  таковыми являются все решетки с  $\beta < 1$ ). Кроме того, сравнение рис.3а и б показывает, что для малых

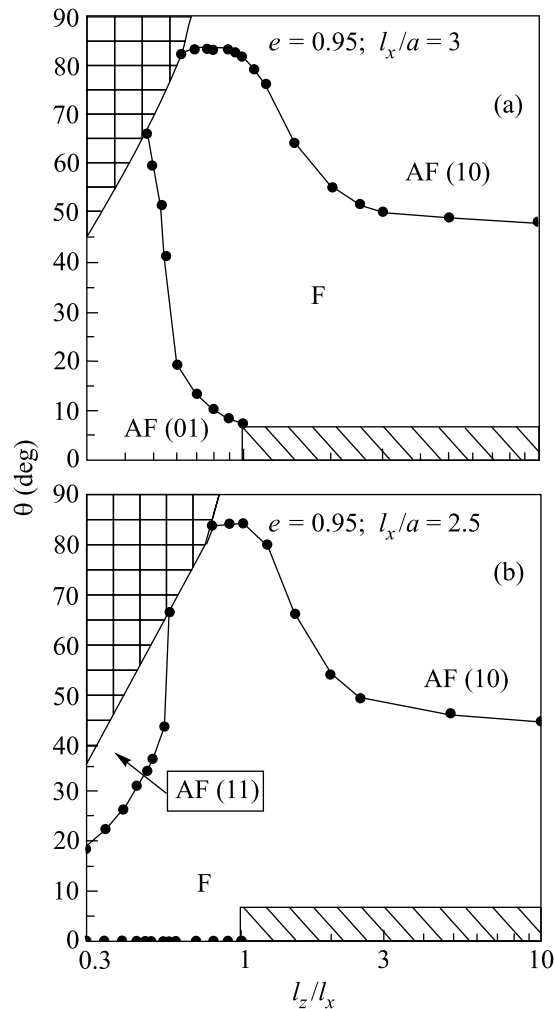


Рис.3 Магнитные фазовые диаграммы прямоугольных решеток эллипсоидальных гранул с эксцентриситетом  $e = 0.95$  для  $\ell_x/a = 3$  (а) и  $\ell_x/a = 2.5$  (б). Границы заштрихованных областей, “запрещенных” геометрией задачи, соответствуют касанию гранул ( $\bullet$ ). Ввиду ограниченной точности модели, нельзя установить точный ход межфазных границ в области  $\theta \ll 10^\circ$ ,  $\beta > 1$ . Известно лишь, что они лежат внутри нижних заштрихованных областей

углов  $\theta$  уменьшение этого отношения может приводить к переходу системы из антиферромагнитного в ферромагнитное состояние.

Мы полагаем, что магнитные фазовые переходы в тонких пленках магнитных металлов могут быть связаны именно с этой особенностью фазовых диаграмм решеток эллипсоидальных гранул. В рамках нашей модели процесс роста пленки сводится всего лишь к изменению масштабного фактора, коим в задаче является размер  $a$  большой полуоси эллипсоидальной гранулы.

Для того чтобы перейти к количественному описанию процесса роста пленки, необходимо связать параметры, характеризующие размер и форму гранул (длину полуоси  $a$  и эксцентриситет  $e$ ) с эффективной толщиной  $d$  пленки. Для этого можно воспользоваться экспериментально определенной (для той же системы) связью  $\epsilon = \epsilon(d)$  между долей  $\epsilon$  открытой (не занятой гранулами Co) поверхности подложки и эффективной толщиной пленки [4]. Очевидно, доля поверхности, закрытой зернами, равна  $1 - \epsilon = \pi ab / \ell_x \ell_z$ , откуда следует необходимое выражение для параметра  $\ell_x/a$ , определяющего характер магнитной фазовой диаграммы:  $\ell_x/a = [\ell_x^{(0)}/a^{(0)}][(1 - \epsilon(d^{(0)}))/(1 - \epsilon(d))]$ , где параметры, снабженные индексом (0), относятся к наиболее тонкой пленке (в экспериментах [4]  $d^{(0)} = 0.9$  ML). Эта зависимость, построенная на основе экспериментальных данных [4] для пленки Co на подложке Cu(110), приведена на рис.4.

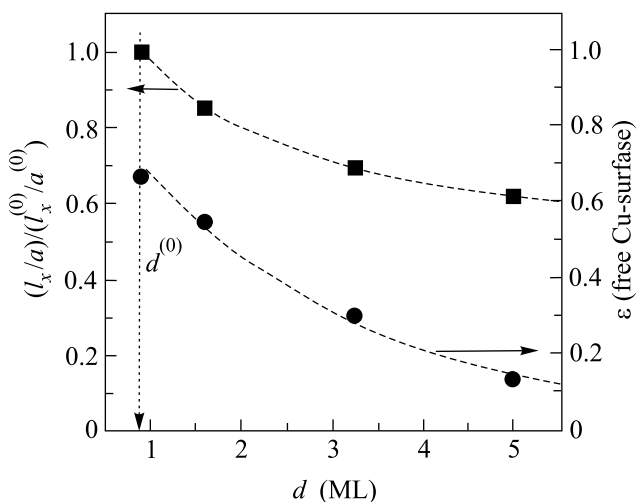


Рис.4. Экспериментальная зависимость  $\epsilon = \epsilon(d)$  доли открытой (не занятой зернами Co) поверхности подложки Cu(110) от эффективной толщины пленки Co [4] (нижняя кривая) и соответствующие расчетные значения параметра  $\ell_x/a$  (верхняя кривая). Параметры, снабженные индексом (0), относятся к наиболее тонкой пленке с толщиной  $d_0 \approx 0.9$  ML (указана вертикальной стрелкой). Эксперимент аппроксимирован экспоненциальной зависимостью  $\epsilon = \exp(-d/2.56)$  (нижняя штриховая кривая), расчет – гиперболической зависимостью  $[\ell_x/a]/[\ell_x^{(0)}/a^{(0)}] = [1 - \epsilon(d^{(0)})]/[1 - \epsilon(d)] = 0.971/d^{0.289}$  (верхняя штриховая кривая)

Согласно [2], форма гранул близка к эллипсоидальной с эксцентриситетом  $e \approx 0.95$ , а отношение средних межгранульных расстояний – “периодов решетки” – составляет  $\beta = \ell_z/\ell_x = 0.5 - 1$ . Что же касается углов  $\theta$  ориентации гранул, то из приведенных в этой

работе СТМ-изображений следует, что они распределены в довольно узком интервале вблизи  $\theta = 0^\circ$ . С ростом эффективной толщины пленки размер гранул увеличивается, а периоды решетки остаются (вплоть до касания гранул) практически неизменными. При этом отношение  $\ell_x/a$ , согласно рис. 3 определяющее магнитное состояние системы, монотонно падает, что и приводит к магнитному фазовому переходу первоначально антиферромагнитного состояния в ферромагнитное. Критическая толщина  $d_c$  пленки, при которой происходит этот переход, и последующая зависимость температуры Кюри  $T_c$  возникающего ферромагнитного состояния определяются, как уже указывалось, значениями параметра дипольного взаимодействия  $\lambda$  для различных магнитных состояний системы.

Исходя из приведенных в [2] СТМ-изображений пленок Co, при расчетах принималось, что: 1) оси всех гранул параллельны друг другу ( $\theta = 0$ ), 2)  $\beta \equiv \ell_z/\ell_x = 0.5$ , 3)  $\ell_x^{(0)}/a^{(0)} = 4$ . На рис.5 представлена

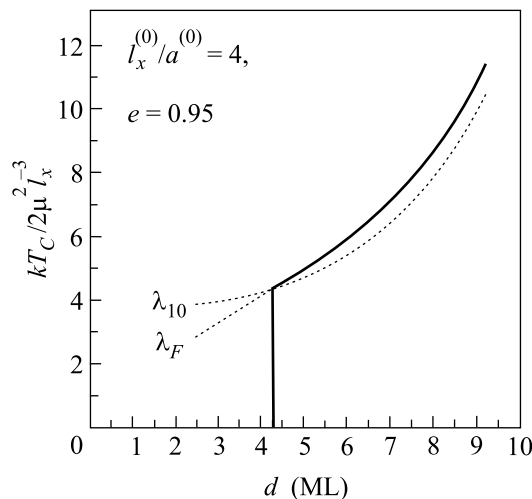


Рис.5. Зависимость  $T_C(d)$  температуры Кюри пленки от ее эффективной толщины. Большие оси гранул параллельны друг другу ( $\theta = 0$ ), эксцентриситет  $e = 0.95$ ; параметры решетки гранул:  $\beta = 0.5$ ,  $\ell_x^{(0)}/a^{(0)} = 4$  [4]

(найденная при этих значениях параметров) зависимость  $T_C(d) = \lambda(d)i_0/k$  температуры Кюри пленок от их эффективной толщины. При выбранном наборе параметров переход системы гранул из антиферромагнитного в ферромагнитное состояние происходит при критической толщине  $d_c \approx 4.3$  ML, что близко к значению, указанному в [2]. По достижении этой толщины температура Кюри возникающего ферромагнитного состояния сразу принимает конечное значение, и затем по мере роста пленки увеличивается. Мас-

штаб начальной критической температуры определяется величиной  $\mu i_0$  и при  $\mu = 300\mu_B$ ,  $i_0 = 10^{-4}$  Э·см (что соответствует объему гранул  $40 \text{ нм}^3$  и их концентрации  $N = 10^{-14} \text{ см}^{-2}$ ) составляет  $T_C \sim 300 \text{ К}$ . Эта оценка вполне согласуется с результатами работ [1], в которых экспериментально зафиксировано резкое увеличение температуры Кюри ультратонких пленок Co по достижении ими критической толщины до величины  $T_C = 200 - 300 \text{ К}$ .

Таким образом, предложенная модель верно предсказывает как характер перехода, так и его количественные характеристики.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 00-02-17191, # 99-02-16955, # 01-02-16420).

1. W. Dürr, M. Taborelli, O. Paul et al., Phys. Rev. Lett. **62**, 206 (1989); C.M. Schneider, P. Dressler, P. Schuster et al., Phys. Rev. Lett. **64**, 1059 (1990); J. de la Figuera, J.E. Pietro, C. Okal, and R. Miranda, Phys. Rev. **B47**, 13043 (1993); A.K. Schmid, D. Atlan, H. Itoh et al., Phys. Rev. **B48**, 2855 (1993); F. Huang, M.T. Kief, G.J. Mankey, and R.F. Willis, Phys. Rev. **B49**, 3962 (1994); F.O. Shumann, M.E. Buckley, and J.A.C. Bland, Phys. Rev. **B50**, 16424 (1994); H.J. Elmers, J. Haushild, H. Höche et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 898 (1994).
2. E. Gu, S. Hope, M. Tselepi, and J.A.C. Bland, Phys. Rev. **B60**, 4092 (1999).
3. Е. З. Мейлихов, Р. М. Фарзетдинова, ЖЭТФ **121**, вып.4 (2002).
4. M.T. Kief and W.F. Egelhoff, Phys. Rev. **B47**, 10785 (1993).