

# 磁性多层膜磁特性的表面效应\*

冯 倩<sup>1)</sup> 黄志高<sup>1)2)</sup> 都有为<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> 福建师范大学物理系, 福州 350007)

<sup>2)</sup> 南京大学固体微结构物理国家重点实验室, 南京 210093)

(2002 年 11 月 28 日收到, 2003 年 3 月 18 日收到修改稿)

利用 Monte-Carlo 方法和转移矩阵法研究了具有不同表面交换耦合  $J_s$  和薄膜厚度磁性多层膜的表面和尺寸对磁相变的影响. 模拟结果表明, 系统的相变温度随薄膜层数的变化取决于  $J_s/J$  ( $J$  为体内交换耦合), 当  $J_s/J$  大于某一临界值时, 由于表面磁有序先于体内磁有序, 系统的相变温度随薄膜层数的增多而降低, 反之, 表面磁无序可与体内磁有序共存, 系统的相变温度随薄膜层数的增多而升高; 当  $J_s/J$  较小时, 随  $J_s$  增大, 系统的居里温度缓慢升高, 趋近于体内相变温度, 而当  $J_s/J$  较大时, 随  $J_s$  增大, 系统的居里温度呈线性升高. 模拟结果与用转移矩阵法推导出的结果相当符合, 且很好地解释了实验事实.

关键词: 磁星多层膜, 交换耦合, Monte-Carlo 模拟, 转移矩阵法

PACC: 7540M, 7570F, 7530T

## 1. 引 言

由于磁性薄膜有希望成为高密度的磁记录介质, 近年来磁性多层膜的基础研究和技术应用已经引起了人们越来越多的兴趣, 尤为关注的是表面和尺寸效应<sup>[1-16]</sup>. 磁控溅射和分子束外延等技术的应用, 人们已成功地制备了各种各样高质量的超晶格和多层膜. 对多层膜而言, 除了磁电阻和层间耦合外, 人们感兴趣的问题是磁矩和居里温度的尺寸效应<sup>[10-14]</sup>. 由于新的薄膜分析技术的提高, 使对磁表面自旋的探测和研究成为可能. Weller 和 Rau 等人研究了 Gd, Cr 和 Tb 多层膜从顺磁状态向铁磁状态的相转变的微观描述, 发现表面原子与内部原子由于周围环境的差异, 表面耦合  $J_s$  不同于内部交换耦合  $J$ , 产生了重要的表面特性, 并观测到了体内顺磁和表面铁磁共存, 表面相变温度高于体内相变温度<sup>[15-17]</sup>. 尽管 Naganishi 和 Fisher 等人利用简单的 Ising 模型证明了上述的相变特征<sup>[18]</sup>, 但 Ising 模型只适用于研究具有很大的磁各向异性的磁性系统.

有效场理论和自旋波激发理论是研究磁性多层膜的常用工具, 但由于计算量和精度的限制, 目前还不能计算原子层数较多较复杂系统, 而且很难给出一个清晰的物理图像<sup>[19, 20]</sup>. 对此, Monte-Carlo 模拟方法提供了一种研究复杂磁性多层膜系统的最有效方法<sup>[1, 3, 21]</sup>. 本文利用 Monte-Carlo 模拟方法和转移矩阵 (TM) 研究了具有不同表面交换耦合  $J_s$  和薄膜厚度的磁性多层膜 (Heisenberg 模型) 磁特性的表面效应和尺寸效应. Monte-Carlo 模拟结果不仅与转移矩阵法计算结果相当符合, 而且很好地解释了实验事实.

## 2. 模型与 Monte-Carlo 算法

在本文的模拟计算中, 考虑  $L \times L \times N$  的三维简单立方晶格结构, 在各个格点上分布不同自旋取向的原子. ( $LS, LN, LS$ ) 磁性多层膜系统包括  $LS$  层上表面层,  $LN$  层中间层,  $LS$  层下表面层, 薄膜总层数  $N = 2 \times LS + LN$ . 为消除边界对计算结果的影响, 在膜面内采用周期性边界条件, 而垂直膜面的方向上采用自由边界条件. 利用 Heisenberg 模型可将系统的哈密顿量表示为

\* 国家教育部中青年骨干教师项目(批准号: DB-041), 福建省自然科学基金(批准号: E0010022), 福建省科学技术厅基金(批准号: 2000Z146) 和国家重点基础研究发展规划项目(批准号: G1999064508) 资助的课题.

$$\begin{aligned}
 H = & - \sum_{ij} J_{ij} S_i S_j \\
 & + D \sum_{ik} \left[ \frac{S_i \cdot S_k}{r_{ik}^3} - 3 \frac{(S_i \cdot r_{ik})(S_k \cdot r_{ik})}{r_{ik}^5} \right] \\
 & - k \sum_i (S_i \cdot u_i)^2 - h \sum_i S_i^z, \quad (1)
 \end{aligned}$$

式中中等号右端第 1 项为磁交换相互作用,  $S_i$  为第  $i$  个原子自旋取向,  $|S_i| = 1$ ,  $J_{ij}$  为第  $i$  个原子和第  $j$  个原子自旋交换耦合相互作用常数, 在表面层面上自旋交换耦合为  $J_s$ , 表面层与中间层之间及中间层内自旋间交换耦合为  $J$ ; 第 2 项为偶极相互作用,  $D$  为偶极相互作用常数,  $r_{ij}$  为自旋  $S_i$  和  $S_j$  的相对距离; 第 3 项为各向异性常数,  $k$  为表面各向异性常数,  $u_i$  为  $i$  格点处易轴的单位矢量; 第 4 项为塞曼能量,  $h$  为外磁场在  $z$  轴方向的分量。

采用标准 Monte-Carlo Metropolis (MC) 对系统进行模拟<sup>[1,3,21]</sup>, 其运算原理如下: 对于有  $n$  个自旋的系统, 在晶格中每个自旋都有一个取向, 这  $n$  个自旋构成一个自旋组态。根据方程 (1), 可以算出某一特定的自旋组态的体系能量  $E_i$ 。随机更改所考虑的原子的自旋组态 (阵点  $i$  的自旋随机转向另一新方向) 算出新组态体系的能量  $E_j$ , 则  $\Delta E = E_i - E_j$ 。若  $\Delta E < 0$ , 说明新自旋组态能量更低, 体系更稳定, 这样新的组态保留下来, 替换原来的自旋组态。若  $\Delta E > 0$ , 利用 Metropolis 准则, 求出其跃迁概率, 利用随机数实现其跃迁。在经过大量的 MC 步模拟, 使其达到平衡分布。本文中抛弃前 20000MC 步, 而对后面的 30000MC 步求平均, 在统计计算中, 每隔 10MC 步计算一次模拟参数, 这样可避免两个连续组态之间的相关性。通过 Markov 过程产生的自旋组态分布

$P(x_l)$  趋于平衡分布:  $p_{\text{eq}}(x_l) = \frac{1}{Z} \exp\left(-\frac{H(x_l)}{k_B T}\right)$ ,

则物理量的热平均  $\langle A(x_l) \rangle = \frac{1}{M} \sum_{l=1}^M A(x_l)$ 。

我们感兴趣的参量有磁化强度  $\chi$ 、比热容  $c_v$ 、磁化率  $M$ , 利用 MC 模拟求其统计平均值:

$$\begin{aligned}
 M(T) = & \langle \left[ \left( \sum_i S_i^x \right)^2 + \left( \sum_i S_i^y \right)^2 \right. \\
 & \left. + \left( \sum_i S_i^z \right)^2 \right]^{1/2} \rangle / N, \quad (2)
 \end{aligned}$$

$$c_v(T) = (\langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2) / NT^2, \quad (3)$$

$$\chi(T) = (\langle M^2 \rangle - \langle M \rangle^2) / NT, \quad (4)$$

$E$  为系统的总能量,  $M$  为系统的总磁化强度,  $\langle \cdot \rangle$  为对利用 Markov 过程产生的遵循平衡分布的各组

态的统计平均。

### 3. 转移矩阵法及其计算

利用转移矩阵法研究 Ising 模型简单立方晶格 ( $S_i \pm 1$ ) 的磁特性。根据平均场理论, 设每一膜层的自旋取向相同, 则第  $i$  层的平均磁化强度  $m_i$  满足下列方程:

$$\begin{aligned}
 m_i = & \tanh[(z_0 J_{i,i} + k)m_i + zJ_{i,i+1}m_{i+1} \\
 & + zJ_{i,i-1}m_{i-1}] / k_B T, \quad (5)
 \end{aligned}$$

式中  $J_{ij}$  为第  $i$  层原子自旋和第  $j$  层原子自旋的交换耦事,  $k$  为表面各向异性常数,  $z_0$  为膜面上的最近邻原子数,  $z$  为与相邻层间的最近邻原子数。在居里温度附近,  $m_i$  很小, 方程 (5) 可近似表示为

$$\begin{aligned}
 m_i = & [(z_0 J_{i,i} + k)m_i + zJ_{i,i+1}m_{i+1} \\
 & + zJ_{i,i-1}m_{i-1}] / k_B T, \quad (6)
 \end{aligned}$$

用矩阵形式可把方程 (6) 改写为

$$\begin{pmatrix} m_{i+1} \\ m_i \end{pmatrix} = M_{i-1} \begin{pmatrix} m_i \\ m_{i-1} \end{pmatrix}, \quad (7)$$

式中  $M_{i-1}$  为转移矩阵, 表示为

$$M_{i-1} = \begin{pmatrix} (k_B T - z_0 J_{i,i} - k)(zJ_{i,i+1}) & -J_{i,i-1}/J_{i,i+1} \\ 1 & 0 \end{pmatrix}. \quad (8)$$

假设有  $N$  层磁薄膜, 则可得

$$\begin{pmatrix} m_N \\ m_{N+1} \end{pmatrix} = R \begin{pmatrix} m_2 \\ m_1 \end{pmatrix}, \quad (9)$$

式中  $R = M_{N-2} \dots M_2 M_1$ ,  $R$  为相邻层转移矩阵的乘积。对 ( $LS, LN, LS$ ) 磁性薄膜系统, 在垂直于膜面方向对称,  $m_i = m_{LN+1-i}$ 。从方程 (6) 和 (9) 可推导出决定系统相变温度的非线性方程

$$\begin{aligned}
 R_{11}[(k_B T - z_0 J_{1,1} - k)(zJ_{1,2})]^2 + (R_{12} - R_{21}) \\
 \times [(k_B T - z_0 J_{1,1} - k)(zJ_{1,2})] - R_{22} = 0. \quad (10)
 \end{aligned}$$

对简单立方晶格结构,  $z_0 = 4$ ,  $z = 1$ 。定义  $t = k_B T / (Jz)$ , 它对应于本文 Monte-Carlo 模拟中的约化温度。从 (8) 和 (9) 式, 可得

$$R = P^{LS-1} Q^{LN} P^{LS-1}, \quad (11)$$

式中

$$P = \begin{pmatrix} t - (4J_s + k)J & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad Q = \begin{pmatrix} t - 4 - k & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}.$$

把 (11) 式代入 (10) 式, 可得

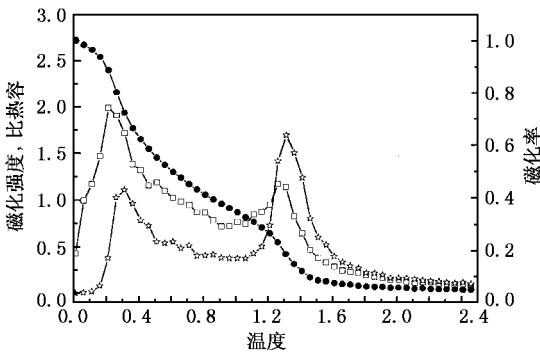
$$\begin{aligned}
 R_{11}[(t - (4J_s + k)J)^2 + (R_{12} - R_{21}) \\
 \times (t - (J_s + k)J)] - R_{22} = 0. \quad (12)
 \end{aligned}$$

对不同  $J_s$ ,  $LS$  和  $LN$  值 利用方程(12)求出对应的相变温度.

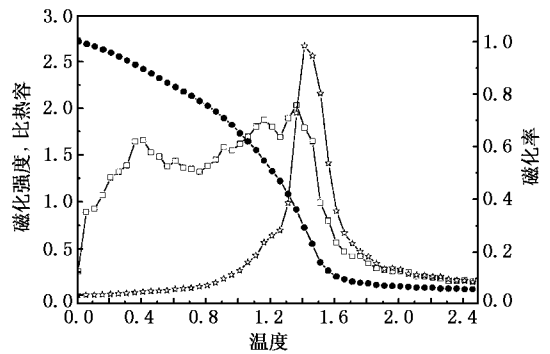
### 4. 结果与讨论

图 1 给出(2 2 2)磁性多层膜系统的磁化强度、比热容和磁化率随温度变化的模拟结果. 当  $J_s/J$  较小时, 磁化率曲线和比热容曲线都出现双峰现象. 第一个比热峰对应的是表面相变, 第二个比热峰对应的是体内相变. 当  $J_s$  增大接近  $J$  时, 表面相变温度增大, 第一个比热峰左移, 峰形变得不明显. 图 2 给

出(3 4 3)磁性多层膜在  $k = 1, J_s/J = 0.1, T = 0.36$  的表面自旋组态和体内自旋组态, 此时表面相变温度和体内相变温度分别为 0.61 和 1.52. 当温度等于 0.66 时, 由于大于表面相变温度, 而小于体内相变温度, 所以表面磁无序, 而体内磁有序. 图 3 给出(3, 4 3)磁性多层膜在  $k = 1, J_s/J = 1.7$  时表面自旋组态和体内自旋组态. 此时表面相变温度(2.15)大于体内相变温度(1.6), 当系统温度介于两者之间, 表面磁有序和体内磁无序可能共存. 这很好解释了 Gd, Gr 和 Tb 等磁性多层膜中都观测到的磁表面重建现象, 即表面出现铁磁性, 而体内为顺磁性<sup>[15-17]</sup>.

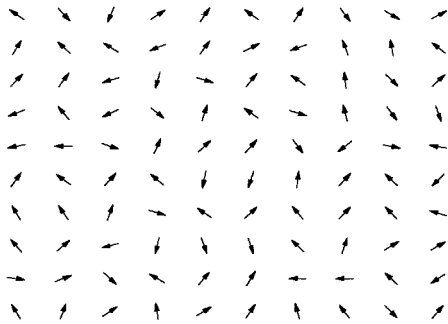


(a)  $J_s = 0.1, J = 1, k = 1$

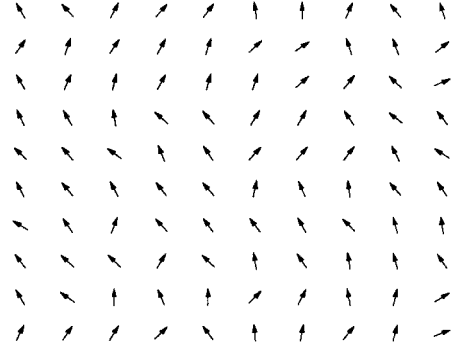


(b)  $J_s = 0.7, J = 1, k = 1$

图 1 (2 2 2)磁性多层膜的磁化强度(☆)比热容(□)、磁化率(●)随温度变化曲线



(a)  $T = 0.66$  时表面自旋组态

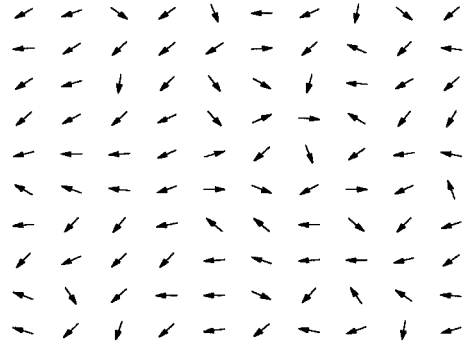
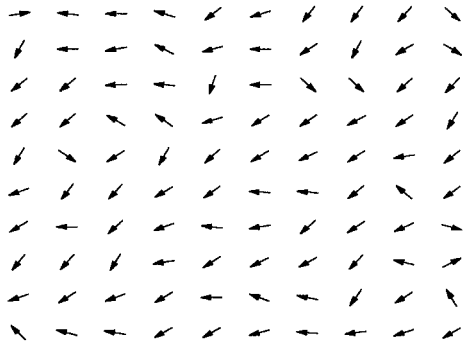


(b)  $T = 0.66$  时体内自旋组态

图 2 (3 4 3)磁性多层膜  $J_s/J = 0.1, k = 1$  此时系统的体内相变温度为 1.52, 表面相变温度为 0.61

图 4 (a) 和 (b) 分别给出利用 Monte-Carlo 方法和转移矩阵法得到的不同薄膜层数的磁性多层膜系统  $T_c$  随  $J_s/J$  的变化. 从中看出对给定层数的多层膜系统, 当  $J_s$  增大接近  $J$  时, 居里温度缓慢升高; 对于(4 7 A)磁性多层膜系统, 居里温度随  $J_s/J$  增大几乎不变. 而当  $J_s/J$  约大于 1 时, 随  $J_s/J$  的增大, 系统的相变温度呈线性升高. 这是由于居里温度与相

互交换耦合紧密相关. 当  $J_s$  增大接近  $J$  时, 系统相变温度趋近于体内相变温度  $T_b$ . 而当  $J_s/J$  大于 1 时, 随  $J_s/J$  增大, 磁交换相互作用能也迅速增大, 系统的相变温度呈线性升高. 图 5 (b) 内插图给出(3, 4 3)多层膜 MC 模拟结果和转移矩阵法计算结果的直接比较, 从中可以看到两者结果十分符合.



(a)  $T=1.61$  时表面自旋组态

(b)  $T=1.61$  时体内自旋组态

图3 (3 4 3)磁性多层膜  $J_s/J=1.7, k=1$  此时系统的体内相变温度为 1.6, 表面相变温度为 2.15

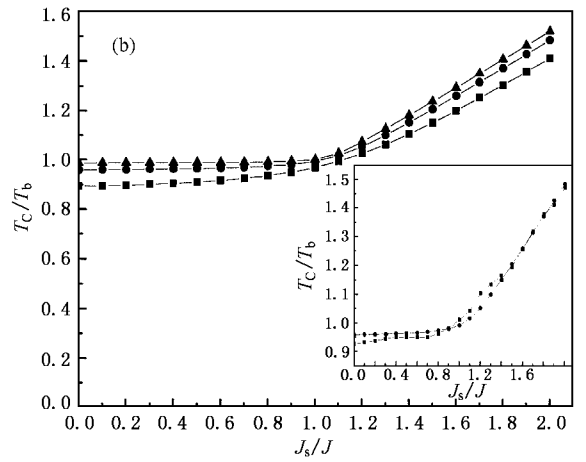
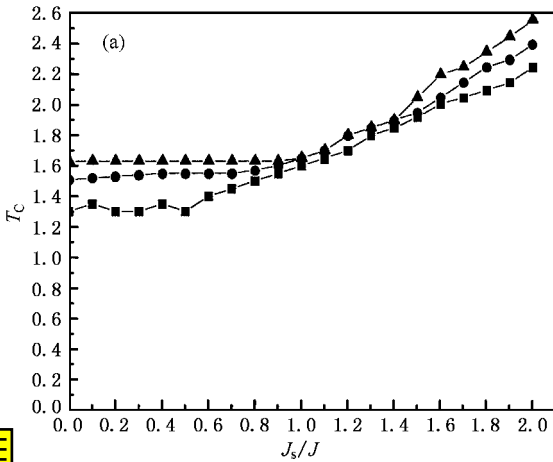


图4 不同  $(LS, LN, LS)$  磁性薄膜系统在  $J=1, k=1$  下 表面交换耦合对相变温度的影响 (a)为 MC 模拟结果 (b)为平均场理论计算结果 ■为(2 2 2), ●为(3 4 3), ▲为(4 7 4), 内插图给出 MC 模拟结果 (■) 和转移矩阵法计算结果 (●) 的直接比较

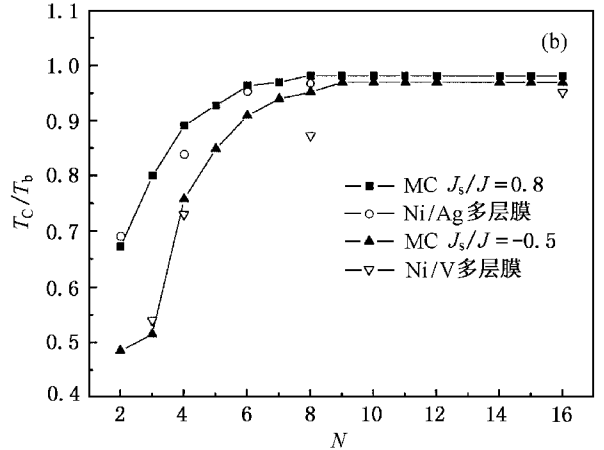
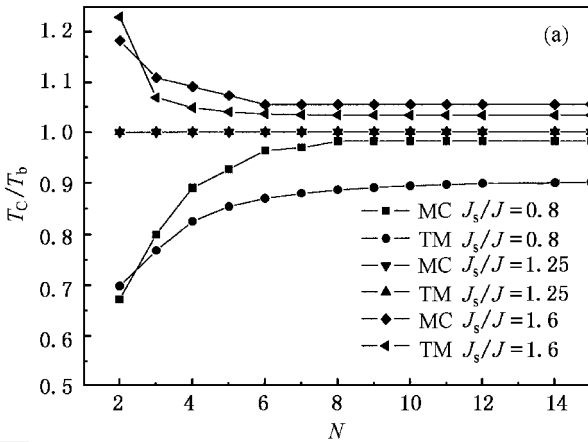


图5 考虑不同的表面交换耦合 研究  $(1, LN, 1)$  系统磁特性的尺寸效应 (a)为利用 MC 方法和转移矩阵法 (TM) 计算得到的系统的相变图, (b)为 MC 模拟结果与 Ni/Ag<sup>[10]</sup> 和 Ni/V<sup>[13]</sup> 实验结果 的直接比较

对  $(1, LN, 1)$  系统,  $k=1$ , 在给定的  $J_s/J$  值下, 连续变化  $LN$  的值, 利用 MC 模拟方法和转移矩阵法研究系统的尺寸对相变的影响. 图 5(a) 给出两种方法计算得到的  $(1, LN, 1)$  多层膜在不同  $J_s/J$  值下  $T_c$  随  $LN$  的变化,  $LN$  为系统的中间层数. 从图 5(a) 看到, 相变温度随层数的变化存在三种不同的特征. 当  $J_s/J$  等于 1.25 时, 不同膜层的居里温度在数值上不变, 都约等于体内相变温度  $T_b$ , 而当  $J_s/J < 1.25$  时, 对于  $N < 8$  区域,  $T_c$  随  $N$  增大而增大而后趋于不变, 当  $J_s/J > 1.25$  时,  $T_c$  随  $N$  增大而减小而后趋于不变. 这是因为  $J_s/J$  小于某一临界值时, 系统的表面相变温度小于体内相变温度,  $N$  增大时, 体内原子数增多, 对应的平均交换耦合相互作用能量增大,  $T_c$  也增大, 当  $N$  增大到一定值时, 系统的相变温度就约等于体内相变温度. 若  $J_s/J$  大于该临界值, 则表面相变温度大于体内相变温度, 随体内原子数的增多, 系统的相变温度减小, 最终趋于  $T_b$ . 用 MC 方法和转移矩阵法得到的趋势基本一致. 图 5(a) 的模拟结果很好地解释了实验事实, Peng, Abid 等人在研究  $Tm/M$  ( $Tm = Fe, Co, Ni; M = Au, Ag, Cu, V, Pd, Ru, Tb$ ) 磁性多层膜的磁特性时, 都发现了当磁层厚度小于 8 层时,  $T_c$  随  $Tm$  层厚度增加而急剧增大, 而当磁层厚度大于 8 层时,  $T_c$  随  $Tm$  层厚度增加缓慢地趋向大块材料或体内的居里温度<sup>[10-14]</sup>. 图 5(b) 给出  $Ni/Ag^{[10]}$  和  $Ni/V^{[13]}$  的实验结果与模拟结果, 对于  $Ni/Ag$  多层膜, 我们取 0.5nm 为一个原子单层. 基于在界面处发生合金反应, 使磁性层中 Ni 原子 3d

电子与  $Ag$  原子的导带电子杂化从而导致 Ni 磁性层表面层磁矩降低的事实, 我们可以选取  $J_s/J$  等于 0.8 模拟  $T_c$  随  $N$  的变化, 通过比较发现模拟结果与实验结果符合得很好. 对于  $Ni/V$  多层膜, 取 0.6nm 为一个原子单层. 由于 Ni 与 V ( $Cr, Mn$ ) 原子之间倾向于形成反铁磁耦合, 故在 Ni 层的表面上  $J_s$  可能会出现小于零的情况. 基于这一情况, 我们选取  $J_s/J$  等于 0.5 来模拟实验结果, 发现模拟结果基本符合实验事实. 上述的比较结果也表明了界面、表面对磁性多层膜的重要影响.

## 5. 结 论

利用 Monte-Carlo 模拟方法, 重点分析磁性多层膜磁特性的表面效应和尺寸效应. 表面原子与内部原子由于周围环境的差异, 使表面交换耦合  $J$  不同于内部交换耦合  $J_s$ , 从而产生了重要的表面特性. 计算结果表明: (1) 当  $J_s/J$  较小时, 表面相变温度小于体内相变温度, 随  $J_s$  增大, 系统的居里温度缓慢升高, 趋近于体内相变温度; 当  $J_s/J$  较大时, 表面相变温度大于体内相变温度, 随  $J_s$  增大, 系统的居里温度呈线性升高. (2) 系统的相变温度随薄膜层数增大而减小, 取决于  $J_s/J$ . 当  $J_s/J$  小于某一临界值时, 由于体内磁有序先于表面磁有序, 系统的相变温度随薄膜层数增多而升高; 反之, 系统的相变温度随薄膜层数增多而降低. (3) 模拟结果与用转移矩阵法推导出的结果相当符合, 并较好地解释了实验事实.

[1] Huang Z G, Feng Q, Chen Z G, Chen S Y and Du Y W *Microelectron. Eng.* to be published  
 [2] Landau D P 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 231  
 [3] Huang Z G and Du Y W 2002 *Phys. Lett. A* **300** 641  
 [4] Zhou Y S, Xie D, Chen J C and Lin D L 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 153 [in Chinese] 周云松、解东、陈金昌、林多梁 2001 物理学报 **50** 153  
 [5] Yipping L, Hadjipanayis G C, Sprensen C M and Klabunde K J 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **104-127** 1545  
 [6] Dubowik J, Stobiecki F, Rohrmann H and Roll K 1996 *J. Magn. Magn. Mater.* **152** 201  
 [7] Zembilgotov A G, Pertsev N A, Kohlsted H and Waser R 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 2247

[8] Borges J F M, da Costa M I Jr, da Cunha J B M and Alves M C M 2001 *J. Magn. Magn. Mater.* **226-230** 1761  
 [9] Penchan M J, Fullerton E E and Schuller I K 1998 *J. Magn. Magn. Mater.* **183** 19  
 [10] Peng C B, Cao Y and Dai D S 1992 *J. Appl. Phys.* **71** 3457  
 [11] Wang J T et al 2001 *J. Magn. Magn. Mater.* **226-230** 633  
 [12] May F, Srivastava P, Farle M, Bovensiepen U, Wende H, Chauvistre R and Baberschke K 1998 *J. Magn. Magn. Mater.* **177-181** 1220  
 [13] Abid M, Ouahmane H, Lassri H, Khmou A and Krishnan R 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **202** 335  
 [14] Liu C and Bader S D 1991 *J. Magn. Magn. Mater.* **93** 307

- [ 15 ] Weller D , Alvarado S F , Gudat W , Schroder K and Campagna M 1985 *Phys. Rev. Lett.* **54** 1555
- [ 16 ] Rau C and Eichner S 1981 *Phys. Rev. Lett.* **47** 439
- [ 17 ] Rau C , Jin C and Robert M 1988 *J. Appl. Phys.* **63** 3993
- [ 18 ] Nandanishi H and Fisher M E 1982 *Phys. Rev. Lett.* **49** 1565
- [ 19 ] Bengrine M , Benyoussef A , Kenz A El , Louldi M and Mhirech F 1998 *Phys. Stat. Sol. ( b )* **208** 207
- [ 20 ] Suga S , Okiji A and Kawakami N 1994 *Phys. Rev. B* **50** 12599
- [ 21 ] Veiller L , Ledue D and Teillet J 1998 *Comput. Mater. Sci.* **10** 283

## Monte-Carlo simulation of surface magnetism of multilayered films \*

Feng Qian<sup>1)</sup> Huang Zhi-Gao<sup>1 2)</sup> Du You-Wei<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> *Department of Physics , Fujian University , Fuzhou 350007 , China )*

<sup>2)</sup> *Stat Key Laboratory of Solid State Microstructures , Nanjing University , Nanjing 210092 , China )*

( Received 28 November 2002 ; revised manuscript received 18 March 2003 )

### Abstract

Based on the Monte-Carlo simulation , the effects of both the ratio of surface interaction to bulk one  $J_s/J$  and the multilayered thickness on the critical behavior are studied. It is found that whether the phase transition temperature increases with increasing number of multilayers depends on the value of  $J_s/J$ . When the value of  $J_s/J$  is above a certain critical value , the system becomes ordered in the surface before it gets in order in the bulk. Below this critical value , one can find that a magnetically disordered surface can coexist with a magnetically ordered bulk phase. For a small  $J_s/J$  , the transition temperature increases slowly with the increase of  $J_s/J$  and finally are equal to the transition temperature of the bulk. When  $J_s/J$  is large enough , the transition temperature increases linearly with the increase of  $J_s/J$ . The simulated results are consistent with those derived by the mean field theory with the transfer matrix method , and well explain the experimental facts.

**Keywords** : magnetic multilayer , exchange interaction , Monte-Carlo simulation , transfer matrix method

**PACC** : 7540M , 7570F , 7530T

\* Project supported by the Foundation for University Key Teachers from the Ministry of Education of China( Grant No. DB-041 ) , the Natural Science Foundation of Fujian Province , China( Grant No. E0010022 ) , the Foundation from the Science and Technology Bureau of Fujian Province , China( Grant No. 2000Z146 ) , and the State Key Development Program for Basic Research of China( Grant No. G1999064508 ) .