

软 x 射线磁性圆二色吸收谱研究铁单晶 薄膜的面内磁各向异性*

李锐鹏 王 † 李红红 郭玉献 王 锋

(中国科学技术大学国家同步辐射实验室,合肥 230029)

胡志伟

(科隆大学物理系,德国科隆 D-50937)

(2004 年 11 月 26 日收到,2005 年 3 月 7 日收到修改稿)

利用软 x 射线磁性圆二色(XMCD)吸收谱测得 Fe/MgO 膜不同磁化方向的轨道磁矩和自旋磁矩.实验表明,沿铁单晶薄膜的不同方向,铁原子轨道磁矩的改变量达到 600% 以上,而自旋磁矩的变化约 50%,但原子的总磁矩没有如此大的改变.结合常规方法分析了铁薄膜的宏观磁各向异性性质,半定量地获得磁矩与宏观各向异性性能的关系,并对样品的磁矩和磁各向异性性能进行了比较.

关键词: x 射线磁性圆二色,磁各向异性,磁性薄膜

PACC: 7525, 7870D, 7570, 7530G

1. 引 言

在磁性超薄膜和多层膜中,一般可认为磁各向异性是体效应和界面效应共同作用的结果,其中包括了偶极效应、磁晶效应和磁弹效应等. van Vleck^[1]提出了磁晶各向异性的微观机制,即磁晶各向异性是由轨道磁矩、晶体场和轨道-自旋耦合产生的.磁各向异性能为饱和磁化强度在铁磁体中沿不同方向磁化时能量的改变量.宏观上看,对于立方结构的磁性薄膜,面内磁各向异性性能可以表示为

$$\epsilon(\phi) = K_0 + \frac{K_1^{\text{eff}}}{4} \sin^2[\chi\phi - \phi_1] + K_u \cos^2(\phi - \phi_u), \quad (1)$$

式中, K_0 为各向同性常数, K_1^{eff} 表示面内双轴的各向异性常数, K_u 是面内单轴各向异性常数. ϕ_1 和 ϕ_u 表示面内各向异性轴相对于晶向的偏移. Bruno^[2]利用微扰方法导出了磁晶各向异性性能与自旋-轨道耦合参数的关系,使得宏观磁各向异性性能与微观磁物理量联系起来. van der Laan^[3]给出的 3d 过渡族金属的磁晶各向异性性能可以表示为

$$E_{\text{MCA}} \approx -\frac{1}{4} \xi S \cdot [\langle L \rangle^\downarrow - \langle L \rangle^\uparrow] + \frac{21\xi^2}{2\Delta E_{\text{ex}}} s \cdot \langle T \rangle, \quad (2)$$

式中, ξ 为轨道-自旋耦合参数, s 是沿磁化方向的单位矢量. 箭头表示不同自旋方向子能带的轨道磁矩. 对于 3d 过渡族金属, 由于 ξ 是一个小量(约 0.05 eV^[2], 相对于 $\Delta E_{\text{ex}} \approx 1$ eV), 因此它的二次项可以忽略^[3]. 在 A 方向的磁晶各向异性性能为

$$E_{\text{MCA}} \approx -\frac{1}{4} \xi [(m_{\text{orb}}^\downarrow)_A - (m_{\text{orb}}^\uparrow)_A]. \quad (3)$$

Goryunov 等^[4,5]曾用铁磁共振技术研究了 MgO 衬底上生长的 Fe 膜的磁各向异性性质,并得到了磁各向异性常数与 Fe 膜厚度的关系. 实验发现随着厚度的减小,双轴磁各向异性常数 K_1 基本上与膜厚成反比. 当厚度大于 4.5 nm 时, K_1 变为常数,其后不再随厚度变化. Costa-Kramer 等^[6]指出,在 Fe/MgO 体系中不仅存在双轴各向异性,而且还有单轴各向异性,并认为这是 Fe 与 MgO 界面效应所致. Brockmann 等^[7]观测到 Fe/MgO 膜面内磁各向异性轴的变化,尤其是在厚度从小增大到约 10 单原子层 (ML) 时易磁轴方向从 [110] 方向变化到 [100] 方向.

* 国家大科学工程项目(批准号 P2B07, P2C07)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: jiewang@ustc.edu.cn

Durand 等^[8]提出,对于面内的单轴各向异性应是 MgO 衬底和 Fe 单晶膜的晶格不匹配导致的磁弹效应造成的,并且其影响可能较大^[7].

常规的磁测手段不能将轨道磁矩和自旋磁矩分开,因此无法在实验上获得磁晶各向异性,而只能测量导致磁各向异性的各种因素的整体效应.尽管极化中子衍射可以测量自旋磁矩和轨道磁矩,但由于中子与磁矩的相互作用很弱,因此到目前为止还不能很好地测量纳米尺度的磁性薄膜样品.基于 x 射线近边吸收的 x 射线磁性圆二色(XMCD)吸收谱是 20 世纪 90 年代发展起来的研究铁磁性原子磁矩的技术.它利用同步辐射的偏振光研究铁磁性材料,特别是铁磁性薄膜、多层膜.当外加磁场平行于入射 x 射线时,铁磁性物质对左旋和右旋偏振光的吸收不同.这种吸收谱的非对称反映了原子平均磁矩的方向和大小.通过测定材料中特定原子的 XMCD 吸收谱,结合加和定则就可以分别获得该元素原子的自旋磁矩和轨道磁矩,从而可以建立磁各向异性与轨道磁矩的关系.

本文利用合肥国家同步辐射实验室新建的 XMCD 吸收谱技术研究 Fe/MgO 在不同方向轨道磁矩的变化,结合宏观测量,以期分析 Fe/MgO 体系的宏观磁各向异性和 Fe 原子磁矩之间的关系.

2. 实 验

实验样品是利用分子束外延法生长的 Fe 单晶膜,衬底选择了 MgO 的 (100) 面. Fe 膜厚度为 15 nm,表面覆盖一层约为 1.5 nm 厚的 MgO 保护膜以防止 Fe 膜在空气中氧化.

Fe 的 XMCD 吸收谱在国家同步辐射实验室 XMCD 站获得.该实验站的光束线可提供从 100 到 1000 eV 的单色化 x 射线,其能量分辨率在 1000 eV 处可以达到 1000,光子通量不低于 10^8 s^{-1} ,光束线焦点处的光斑尺寸在水平方向是 3 mm,垂直方向是 1 mm.在 700 eV 处,理论计算得到的单色化后的 x 射线的圆偏振度约为 65%. x 射线入射到样品的入射角为 60° . Fe 的 L_2 和 L_3 吸收谱的记录范围是 700—750 eV,实验时入缝和出缝分别为 0.3 和 0.1 mm,估计的能量分辨率约为 900,故扫描步长取 0.2 eV 满足能量分辨要求.吸收谱的测量采用样品电流法收集信号,收集模式为全电子产额(total electron yields).实验中发现外磁场对电子的测量存在较大

干扰,因此实验过程中是利用了样品的剩磁.为消除选取不同偏振光引入的偏振度误差,采用了反转外磁场的测量模式. x 射线衍射(XRD)测量使用 Philips X'Pert PRO SUPER 型 x 射线粉末衍射仪.磁滞回线的测量使用的是日本理研 VMS-55 型振动样品磁强计自动测量系统.

3. 结果及讨论

图 1 是样品的 XRD 曲线.从图 1 可以看到,有较强的 bcc 铁单晶的 (200) 衍射峰.在图 1(b) 的摇摆曲线中,对称度和半高宽表征了晶粒沿 [001] 轴围绕法线的取向度.半高宽越小,不对称度越接近于 1,薄膜的取向度越高.样品的半高宽为 1.319° ,不对称度为 0.86,因此薄膜有很好的取向度和周期结构.根据 XRD 谱以及外延生长的晶格匹配,认为 Fe 膜沿 MgO 的 [001] 方向生长,其 [110] 方向与 MgO 衬底的 [100] 方向平行.

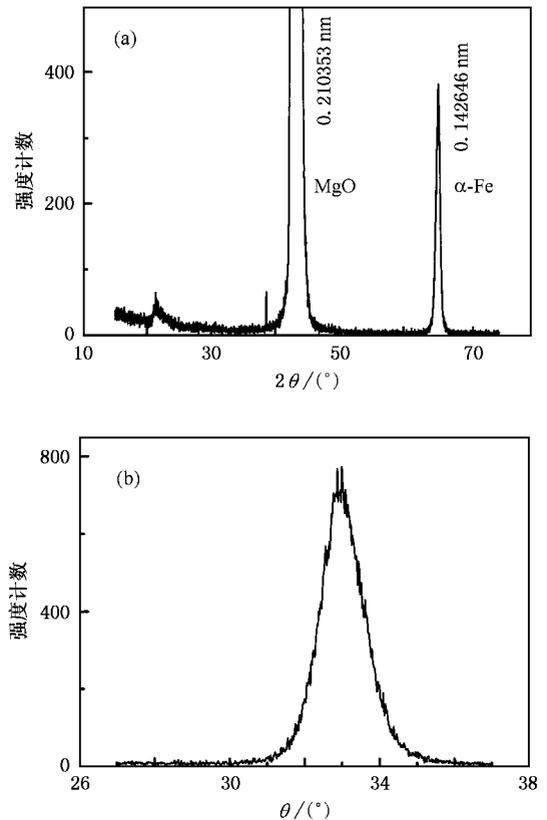


图 1 Fe/MgO 样品的 XRD 图谱 (a) 和铁单晶摇摆曲线 (b). 衍射峰分别对应 MgO ($2\theta = 45^\circ$), Fe 膜 (65.3°) 和 MgO 谐波的衍射峰 (21.4°)

图 2 是样品沿不同角度的磁滞回线.由图 2 可

见样品的 $M-H$ 曲线斜率沿样品边 90° 方向的要大于 45° 方向的, 因此沿该向样品更易被磁化.

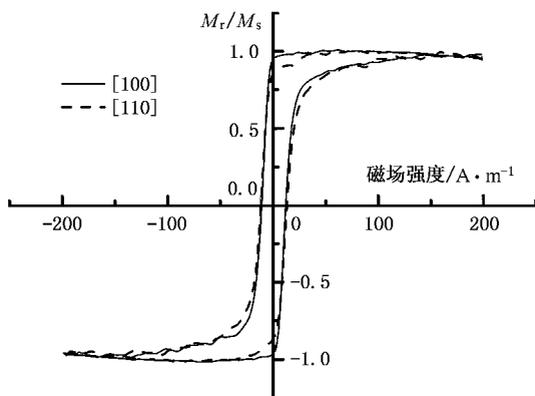


图 2 Fe 膜在 90° 和 45° 方向上的磁滞回线

根据文献 [7], 在 Fe 膜较厚 (大于 10 ML) 时, Fe 膜面内的易磁化轴方向为 $[100]$, 难磁化轴方向为 $[110]$, 从而推断此样品的晶轴方向, 90° 方向对应的应该是 $[100]$ 或 $[010]$, 45° 方向对应的是 $[010]$.

根据 XMCD 的加和定则, Fe 原子轨道磁矩和自旋磁矩可由下述公式得到:

$$m_{\text{orb}} = -\frac{4 \int_{L_2+L_3} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{3 \int_{L_2+L_3} (\mu_+ - \mu_-) d\omega} (10 - n_{3d}),$$

$$m_{\text{spin}} = -\frac{6 \int_{L_3} (\mu_+ - \mu_-) d\omega - 4 \int_{L_2+L_3} (\mu_+ - \mu_-) d\omega}{\int_{L_2+L_3} (\mu_+ + \mu_-) d\omega} \times (10 - n_{3d}) \left(1 + \frac{7 \langle T_z \rangle}{2 \langle S_z \rangle}\right)^{-1}, \quad (4)$$

式中, μ 是消除入射光强后的吸收谱, $\langle T_z \rangle$ 是磁偶极算符的期望值, 在 Hartree 原子单位中 $\langle S_z \rangle \approx 1/2 m_{\text{spin}}$. 根据理论计算, 对于 bcc Fe, $\frac{\langle T_z \rangle}{\langle S_z \rangle} \approx -0.38\%$ [9], 因此在计算自旋磁矩时可忽略. 消背景采用了 x 射线吸收谱中常用的“台阶”函数法.

为考察 Fe 膜沿表面不同方向的原子磁矩, 实验时保持 x 射线的入射角不变, 沿样品表面法线方向转动样品, 选择三个方向测量了铁的 XMCD 吸收谱 (图 3). 表 1 是根据测得的吸收谱求出的原子磁矩.

磁滞回线的测量表明, 不同晶向的磁化难易程度是有差异的. 根据磁滞回线的物理意义, 磁各向异性能在同一晶面可以表示为

表 1 沿 (001) 面不同方向的轨道磁矩和自旋磁矩

晶向	$[100]$	$[010]$	$[110]$
轨道磁矩/ μ_B	0.452	0.267	0.069
自旋磁矩/ μ_B	1.592	1.686	2.335
总磁矩/ μ_B	2.044	1.953	2.404

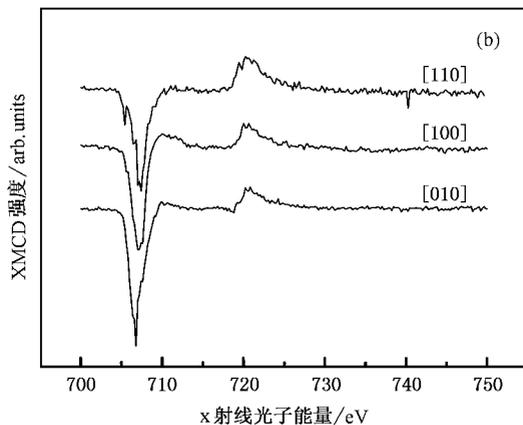
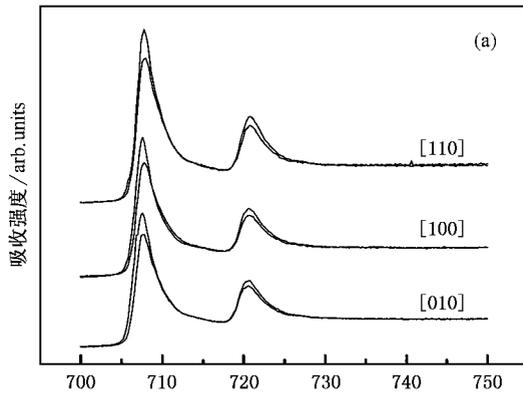


图 3 保持入射 x 射线的角度不变, 沿样品法线方向转动样品得到的在相反的磁化方向下 Fe 膜对圆偏振 x 射线的吸收谱 (a) 和相应的 XMCD 谱 (b)

$$E_{\text{MCA}} = \int_{\Omega(A1)}^{M_s} \mu_0 H dM - \int_{\Omega(A2)}^{M_s} \mu_0 H dM. \quad (5)$$

对于本实验中的 Fe 膜, 考虑 $[110]$ 和 $[010]$ 方向有

$$E_{\text{MCA}} = \int_{\Omega[110]}^{M_s} \mu_0 H dM - \int_{\Omega[010]}^{M_s} \mu_0 H dM = 1.3 \times 10^4 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}. \quad (6)$$

由 XRD 得到晶格的体积可以估算出单位体积内的 Fe 原子数约为 5×10^{23} , 从磁滞回线求得的单个原子的磁晶各向异性能近似为 $1 \mu\text{eV}$.

对于 XMCD 而言, 轨道的加和定则给出的是原子总的轨道磁矩, 而无法区分自旋向上和向下的电

子对轨道磁矩的贡献. Fe 单晶的 3d 能带分裂为自旋向上和向下的两个子能带. 根据能带理论的计算, Fe 的自旋向上的空穴数约为 0.2 个, 自旋向下的空穴数为 2.4. 若假设二者对轨道磁矩的贡献具有相同的比例, 即自旋向上的轨道磁矩是总轨道磁矩的 8%, 自旋向下的轨道磁矩是总轨道磁矩的 92%, 则由 (3) 式可得 [110] 方向和 [010] 方向原子的磁晶各向异性是 2 meV, 显然这是一个“巨大”的磁晶各向异性. 尽管尚不能知道确切的原因, 但许多实验表明, XMCD 得到的磁晶各向异性普遍大于由宏观实验技术测量所得的各向异性常数^[10]. 二者间可以唯象地表示为

$$E_{\text{MCA(XMCD)}} = \alpha E_{\text{MCA(macro)}},$$

其中 $\alpha = 15-45$. 另一方面, 由于实验样品有覆盖层, XMCD 的测量又是利用总电子产额, 因此测量的深度估计在 2—3 nm. 在这个深度范围内表面效应显得较为重要. 实验和理论计算均表明, 表面效应导致的磁晶各向异性要比体效应的大 1 个数量级^[11]. 考虑到这些因素, 基本上可以半定量地解释二者存在的 3 个数量级的差异. 根据样品的各向异性和 Fe 膜的晶体结构, 可以推断 Fe 膜存在着双轴磁晶各向异性 [100] 和 [010] 方向可以认定为易磁轴, 而 [110] 方向是难磁轴. 这也与体形态的 bcc Fe 单晶样品所具有的磁晶各向异性一致. 可以认为 Fe 膜中的双轴磁晶各向异性是 bcc 结构中固有的特性.

对于 bcc 晶体结构 [100] 与 [010] 方向是无法区别的, 即两个方向晶体场等同, 磁各向异性也应是等同的. 但 XMCD 计算出的轨道磁矩相差近 70%, 如此大的差值已经不能归结为实验误差了, 应存在

其他因素使得数据有这样明显的偏差. 注意到文献 [5] 得到的面内单轴各向异性常数 $K_u \approx 2 \times 10^4 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3}$, 与磁晶各向异性常数 K_1 是可比拟的. 在此我们认为在样品中存在单轴各向异性是 [100] 与 [010] 方向上轨道磁矩不同的原因. Fe 单晶磁性薄膜中的单轴各向异性主要是由于薄膜与衬底晶格的失配造成的^[8], 因此是一种磁弹效应. 磁弹效应的微观机制在于原子磁矩间的交换相互作用^[12]. 对比于磁晶各向异性的机制, 可以唯象地假设为

$$E_{\text{uniaxial}} \approx -\frac{1}{4} \zeta [(m_{\text{orb}}^{A1} - m_{\text{orb}}^{A2})^2 - (m_{\text{orb}}^{A1} - m_{\text{orb}}^{A2})^2], \quad (7)$$

式中 ζ 是表征原子磁矩间相互作用常数. 若 (7) 式成立, 则由单轴各向异性导致的原子磁矩的变化为

$$\Delta m_{\text{orb}} = m_{\text{orb}}^{[100]} - m_{\text{orb}}^{[010]} = 0.185 \mu_B. \quad (8)$$

对比于 [010] 和 [110] 的轨道磁矩差 (磁晶各向异性) $0.198 \mu_B$, 基本是与磁晶各向异性在同一量级. 这也和 K_u 与 K_1 可比拟这样的实验结果相符.

4. 结 论

对 MgO/Fe(15 nm) 磁性薄膜的结构和磁学性质进行了较详细的研究分析. 通过 XMCD 实验得出了 Fe 膜在不同晶向的自旋与轨道磁矩. 对于 15 nm 厚的 Fe 膜, 双轴磁各向异性与单轴磁各向异性叠加在一起, 使得轨道磁矩在不同晶向上具有不同的原子磁矩. 从轨道磁矩看, 磁矩的变化量基本相同, 因而磁晶各向异性和单轴各向异性基本相同, 这也与文献中报道的宏观测量相符.

- [1] van Vleck J H 1937 *Phys. Rev.* **52** 1178
- [2] Bruno P 1989 *Phys. Rev.* **B 39** R865
- [3] van der Laan G 1998 *J. Phys.: Condens. Matter* **10** 3239
- [4] Goryunov Y V, Garifyanov N N, Khaliullin G G *et al* 1995 *Phys. Rev.* **B 52** 13450
- [5] Goryunov Y V, Garifullin I A, Muhge T *et al* 1999 *J. Exper. Theore. Phys.* **88** 377
- [6] Costa-Kramer J L, Menendez J L, Cebollada A *et al* 2000 *J. Magn. Magn. Mater.* **210** 341
- [7] Brockmann M, Miethaner S, Onderka R *et al* 1997 *J. Appl. Phys.* **81** 5047
- [8] Durand O, Childress J R, Galtier P *et al* 1995 *J. Magn. Magn. Mater.* **145** 111
- [9] Chen C T, Idzerda Y U, Lin H J *et al* 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 152
- [10] Dhesi S S, van der Laan G, Dudzik E *et al* 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 067201
- [11] Boeglin C, Stanescu S, Deville J P *et al* 2002 *Phys. Rev.* **B 66** 014439
- [12] Chikazumi S 2002 *Physics of Ferromagnetism* (Lanzhou: Lanzhou University Press) p288 (in Chinese) [近角聪信 2002 铁磁性物理论 (兰州: 兰州大学出版社) 第 288 页]

In-plane anisotropy of iron single-crystal thin film using x-ray magnetic circular dichroism *

Li Rui-Peng Wang Jie[†] Li Hong-Hong Guo Yu-Xian Wang Feng

(National Synchrotron Radiation Laboratory , University of Science and Technology of China , Hefei 230029 , China)

Hu Zhi-Wei

(II Physikalische Institut , Universitat zu Köln , Köln D-50937 ,Germany)

(Received 26 November 2004 ; revised manuscript received 7 March 2005)

Abstract

X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) in the absorption of the single-crystal iron thin film deposited epitaxially on MgO substrate is studied to get the spin and orbital moment. The experiments show that along with different crystal axes , the change of orbital moment of Fe atoms is about 600% , the change of the spin moment is only about 50% , but the change of total moment is not so large. Researching the anisotropy by means of routine methods , the relation between the magnetic moment and the anisotropy of the thin film is studied.

Keywords : x-ray magnetic circular dichroism , magnetic anisotropy , magnetic thin film

PACC : 7525 , 7870D , 7570 , 7530G

* Project supported by the National Large-science Program (Grant Nos. P2B07 , P2C07).

[†] Corresponding author. E-mail : jiewang@ustc.edu.cn