

# Fe/Pd 金属超晶格的磁性和内转换 电子 Mössbauer 谱研究\*

李 民<sup>1)</sup> 梅良模

山东大学物理系, 济南 250100

1991 年 8 月 8 日收到

利用真空双源蒸镀法成功地制备了 Fe/Pd 金属超晶格, 并对其结构和磁性进行研究. 发现其比饱和磁化强度在固定 Pd 层 30 Å 不变时, 随 Fe 层厚度减小而单调上升, 这是界面处 Fe 对 Pd 的极化效应造成的, 且得出 0K 下极化效应的等效 Fe 层厚度约为 10 Å; 低温下  $\sigma$ - $T$  关系满足 Bloch 的  $T^{3/2}$  定律, 自旋波劲度系数随 Fe 层厚度减小而单调增大; 居里温度则单调下降.  $^{57}\text{Fe}$  内转换电子 Mössbauer 谱 (CEMS) 的测量进一步证实极化效应的存在, 而界面处 Fe 原子不存在磁性增强, 也不存在“死层”效应.

PACC: 7570; 6860; 7550K; 6865

## 一、引 言

最近, 磁性超晶格的研究吸引越来越多的科学家的浓厚兴趣. 因为它是研究二维磁性、界面磁性、层间磁耦合、界面各向异性、层间原子扩散等问题的有效手段, 同时也为探索新型人造材料提供新的方法.

对众多元素组成的超晶格如 Fe/Mg<sup>[1]</sup> Fe, Co, Ni/Cu<sup>[2-4]</sup>, Fe/Pd<sup>[5]</sup>, Co/Pd<sup>[6]</sup> 等的界面磁性、层间耦合、界面各向异性等人们已进行一系列的研究, 取得一些成果. 但是, 还有许多问题尚未完全弄清楚, 值得研究. 我们选择铁磁性元素 Fe 和顺磁性元素 Pd 来进行超晶格 Fe/Pd 的结构和磁性研究. 由于 Pd 的 Stoner 因子比较大 ( $S = 10$ ), 因此亦称之为“近铁磁性金属”. Pd 与铁磁性金属形成合金时有许多异常现象: 如 Fe 在稀释 FePd 合金中的巨磁矩 ( $10-15\mu_B/\text{atom}$ )<sup>[7]</sup>, FePdPt 固溶体随 Pd 成分不同呈铁磁性、反铁磁性和亚铁磁性转变等<sup>[8]</sup>. 因此 Fe/Pd 超晶格是研究交换相互作用、交换极化的理想系统, 同时也可研究界面各向异性对超晶格的磁各向异性所起的作用, 以及 Pd 作为近铁磁性金属对界面处 Fe 原子磁性的影响等. 本文主要对 Fe, Pd 间极化效应及其对超晶格磁性的影响做一些研究.

\* 中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室资助的课题.

1) 通讯地址: 山东省电子工业局, 济南 250011

## 二、样品制备与测量

Fe/Pd 超晶格样品的制备采用真空双源蒸镀法。蒸发过程中由石英晶体振荡器监测蒸发速率, Fe, Pd 蒸发速率分别固定为 0.5 和 0.75 Å/s, 蒸发时间和衬底夹具的转动由步进电机和单板机组成的系统自动控制, 衬底采用 0.1mm 厚的玻璃片; Fe, Pd 的纯度分别优于 99.9% 和 99.99%。蒸发前真空度为  $3 \times 10^{-4}$  Pa。固定 Pd 层厚度 30 Å 不变, 制备一组样品, Fe 层厚度值分别为  $d_{Fe} = 5.7, 11.2, 16, 20, 30, 37$  和 56 Å, 它们的调制周期数均为 40。

样品的结构由 X 射线衍射确定。X 射线为  $\text{CuK}_\alpha$  辐射, 其波长为  $\lambda_x = 1.54178$  Å。磁性测量由微机控制的 Model 9500 型振动样品磁强计 (VSM) 进行。磁强计的磁场为  $0-8 \times 10^3$  A/m, 温度范围为 77—1000K。以丙酮蒸汽为工作气体, 采用背散射方式, 采集样品的 CEMS。放射源为 Pd 点阵中的  $^{57}\text{Co}$ , 强度为 25mCi。室温下采集的 CEMS 用标准 MUSFUN 程序进行拟合。

## 三、实验结果与讨论

### 1. 结构测量

小角 X 射线衍射表明, 样品具有良好的调制结构。样品的调制周期由  $2d \sin \theta_n = n\lambda_x$  得出,  $\theta_n$  为第  $n$  级衍射峰的角位置。由小角衍射计算出的调制波长与设计值符合得比较好, 相对误差在 10% 之内。图 1 为 Fe(30 Å)/Pd(30 Å) 样品的小角 X 射线衍射图。

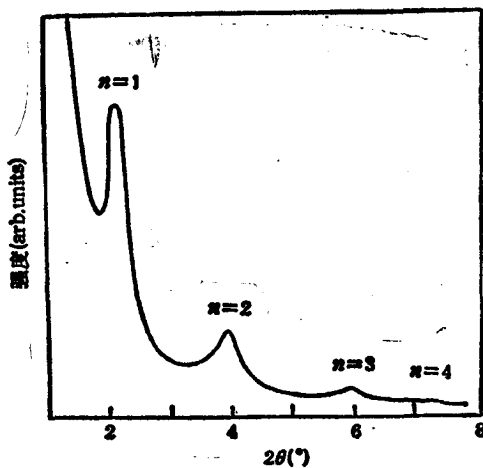


图 1 Fe(30 Å)/Pd(30 Å) 样品的小角 X 射线衍射图

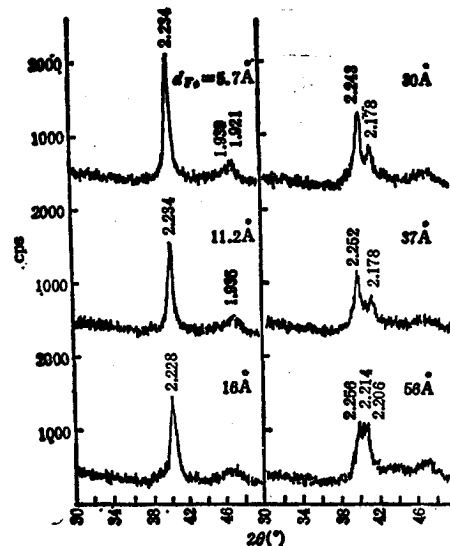


图 2 Fe/Pd 超晶格的大角度 X 射线衍射图

大角度 X 射线衍射反映样品层内的结构状况与超晶格调制比之间的关系, 图 2 为

Fe/Pd 超晶格的大角度 X 射线衍射图。从图 2 中可以发现: Fe 层厚度小于 30 Å 时只出现 Pd(111), Pd(200) 衍射峰, 峰的位置向高角方向略有移动, 即 Pd(111), Pd(200) 面间距变小; 随 Fe 层变厚, Pd(200) 峰变得不明显, Pd(111) 变弱, Pd(111) 峰位向低角方向移动, 面间距变大并逐渐接近体材料的值; 在 Fe 层厚度大于 30 Å 时, Pd(111) 峰附近出现几个衍射峰, 但并不对应于 bcc Fe(110) 或 fcc Fe(111)。在 Fe/Pd 超晶格中, Pd 层是以 (111), (200) 面择优生长的, 而 Fe 层结构尚不确定。可以认为 Pd 峰位随 Fe 层厚度的变化是由于两种晶格不匹配造成的。由于 Fe 与 Pd 的原子间距相差比较大 (bcc Fe 为 2.48 Å, fcc Fe 为 2.579 Å, fcc Pd 为 3.125 Å), 只有当 Fe (或 Pd) 远薄于 Pd (或 Fe) 层时, 才能形成以 Pd (或 Fe) 点阵为特征的共格匹配。当 Fe 层厚度变大时, Fe 层的形变能增大, 到一定程度形变能的增大大于界面晶格耦合能的减小, 为消除形变能的增加, 只有在层内产生位错, 并且随着位错的发展和数量的增加直到形变能完全解除。这时超晶格由共格结构变为非共格结构, 在界面处出现畸变区。畸变区的出现导致 Pd(111) 峰附近的几个峰, 并使衍射峰变宽、变弱。Pd 层由于应力得到释放, Pd(111) 面间距趋向于体材料的值。

## 2. 磁性测量

用振动样品磁强计测量样品的磁性。所加磁场为  $8 \times 10^3 \text{ A/m}$ , 磁场平行膜面, 样品尺寸为  $8 \times 5 \text{ mm}^2$ 。

室温下测量结果表明: 样品单位铁体积的比饱和磁化强度随 Fe 层厚度减小而单调上升。为进一步分析, 测量 77—300K 温区内比饱和磁化强度与温度的关系, 发现符合 Bloch 的  $T^{3/2}$  定律

$$\sigma_s(T) = \sigma_s(0)(1 - BT^{3/2}). \quad (1)$$

由 (1) 式拟合实验数据可得样品在 0K 下的比饱和磁化强度  $\sigma_s(0)$ 。图 3 给出  $\sigma_s(0)$  与 Fe 层厚度的关系曲线,  $\sigma_s(0)$  与  $1/d_{Fe}$  呈线性关系。出现这种现象的原因在于界面处 Fe 原子对 Pd 原子的极化使 Pd 产生极化磁矩, Fe, Pd 原子间的相互作用是通过传导电子而发生的 RKKY 相互作用。Moriya<sup>[7]</sup> 用这种相互作用解释 FePd 稀释合金中 Fe 原子的巨磁矩 ( $10-15 \mu_B/\text{atom}$ )。假设 Fe 原子对 Pd 的极化效应等效于 Fe 层增加一个厚度  $d_s$ , 且 Fe 层内部磁矩与 Fe 层厚度无关。于是可将  $\sigma_s(0)$  与  $d_{Fe}$  的关系表示为

$$\sigma_s(0) = \sigma_{Fe}(0)(1 + d_s/d_{Fe}). \quad (2)$$

由 (2) 式及  $\sigma_s(0)$  与  $1/d_{Fe}$  关系可得  $d_s \approx 10 \text{ Å}$ 。这是相当于两边 Fe 层界面的极化造成的, 对于一个边的界面而言相当于  $5 \text{ Å}$ , 与 Schröder<sup>[9]</sup> 在 Fe 膜上沉积 30 Å Pd 所得结果比较接近。本文结果偏大可能是温度不同造成的, 因为 Schröder 的结果是室温下得到的, 而本文则是外推到 0K 的数值。

由 (1) 式拟合得到自旋波劲度系数  $B$ , 发现  $B$  随 Fe 层厚度减小而单调增大。根据上述实验结果, 可以认为 Fe 的磁化强度与温度的关系和 Fe 极化 Pd 的磁化强度与温度的关系都符合 Bloch 的  $T^{3/2}$  定律。于是

$$\sigma_{Fe}(T) = \sigma_{Fe}(0)(1 - B_{Fe}T^{3/2}), \quad (3)$$

$$\sigma_{FePd}(T) = \sigma_{FePd}(0)(1 - B_{FePd}T^{3/2}), \quad (4)$$

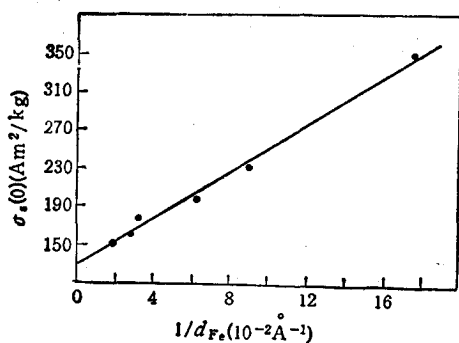


图3 0K 下比饱和磁化强度  $\sigma_s(0)$  与 Fe 层厚度的关系

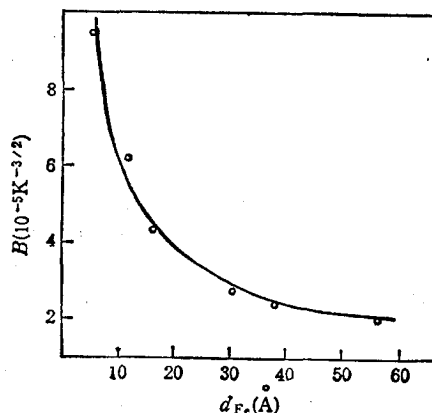


图4 自旋波劲度系数  $B$  与 Fe 层厚度的关系

$$\text{同时} \quad \sigma_s(T) = \sigma_{Fe}(T) + \sigma_{FePd}(T). \quad (5)$$

$$\text{由(2)式} \quad \sigma_s(0) = \sigma_{Fe}(0) + \sigma_{Fe}(0)(d_s/d_{Fe}) = \sigma_{Fe}(0) + \sigma_{FePd}(0). \quad (6)$$

由(3)–(6)式联立得

$$\sigma_s(T) = \sigma_s(0) \left\{ 1 - \left[ B_{Fe} + \frac{d_s}{d_s + d_{Fe}} (B_{FePd} - B_{Fe}) \right] T^{3/2} \right\}. \quad (7)$$

与(1)式比较可得

$$B = B_{Fe} + \frac{d_s}{d_s + d_{Fe}} (B_{FePd} - B_{Fe}). \quad (8)$$

利用(8)式拟合  $B$  与  $d_{Fe}$  关系可得  $B_{Fe} = 0.6 \times 10^{-5} \text{K}^{-3/2}$ ,  $B_{FePd} = 10.4 \times 10^{-5} \text{K}^{-3/2}$ . 如图4所示,理论与实验符合得比较好.这表明由 Fe, Pd 之间极化效应产生的磁化强度随温度下降比 Fe 快得多,也就是更容易激发自旋波.这与 FePd 合金居里温度低,磁化强度随温度下降快的规律相一致<sup>[10]</sup>.

由 300–1000K 温区内比饱和磁化强度与温度的关系确定样品的居里温度  $T_c$ . 图

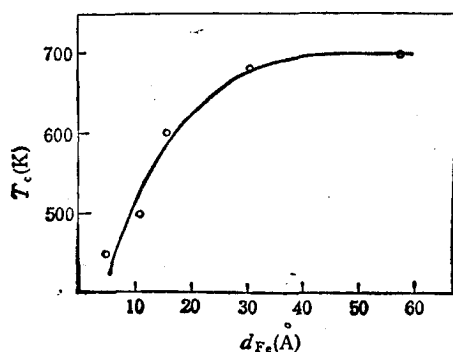


图5 居里温度  $T_c$  与 Fe 层厚度的关系

5 为  $T_c$  与 Fe 层厚度  $d_{Fe}$  关系,随  $d_{Fe}$  减小  $T_c$  单调下降.造成这一现象的原因可能有两个:一是维度效应的影响,Fe 层较薄时易于激发自旋波,磁化强度随温度上升而下降的速度比较大,导致  $d_{Fe}$  小的样品居里温度低;二是测量升温过程中层间原子互扩散的影响,这种扩散使得 Fe 层较薄的样品在比较低的温度下几乎全部形成 FePd 合金,而我们知道 FePd 合金的居里温度比较低<sup>[10]</sup>,因此 Fe 层薄的样品  $T_c$  较低.对于 Fe 层较厚的样品在高于 FePd 合金居里温度时,还有一部分未发生扩散的 Fe 存在,由于居里温度由最强相互作用决定,此时这些样品的  $T_c$

有一部分未发生扩散的 Fe 存在,由于居里温度由最强相互作用决定,此时这些样品的  $T_c$

较高;同时未发生扩散的有效 Fe 层厚度较薄,维度效应的影响使其居里温度仍比纯 Fe 膜低。随着增加 Fe 层厚度其居里温度将会逐渐接近纯 Fe 膜的居里温度。

在本文测量的磁化强度与温度的关系中,并没有观察到磁性层较薄时磁化强度与温度呈线性关系,即二维磁性<sup>[11]</sup>。可以认为正是 Fe, Pd 原子之间的相互作用使磁性层之间发生了耦合,这种层间耦合使样品磁性体现三维特征。

### 3. Fe<sup>57</sup> 的 CEMS 测量

在室温下采集三个超晶格样品和一个纯 Fe 膜的 <sup>57</sup>Fe 的 CEMS。由于 Pd 的原子序数比较大,易于吸收  $\gamma$  射线,且与  $\gamma$  射线相互作用时易发生康普顿散射,产生光电子,造成 <sup>57</sup>Fe 内转换电子的信号相对减弱,信噪比降低,使得 Fe/Pd 超晶格的 CEMS 难于采集。所以仅采集三个 Fe 层 30 Å 以上的样品的 CEMS。从图 6 可以看出: Fe/Pd 超晶格样品的线宽比纯 Fe 膜要大,并且 6 线谱左右有些不对称,预示着 Fe 层超精细场存在分布,至少需要用两套 6 线谱拟合。本文采用两套谱拟合,分别相应于样品中 Fe<sup>57</sup> 不同的晶位 (Fe 层内部和 Fe 层界面)。6 线谱中 16, 25, 34 峰的强度、线宽和位置是两两相等的,拟合时采用洛伦兹线型。拟合结果列于表 1 中。

由表 1 中可以看出, Fe 层内部的超精细场  $H_{hf}$  和同质异能位移 (IS) 与纯 Fe 膜的几乎完全一致; Fe 层界面处的超精细场  $H_{hf}$  比纯 Fe 膜略有减小,减小的数值与 Fe 层厚度关系不大。不存在界面处 Fe 原子的磁性增强,也不存在“死层效应”,只是磁性略有减弱。这可能是由于对称性破缺造成的。比饱和磁化强度随 Fe 层减薄而增大的现象只能用 Fe, Pd 间的极化效应来解释。Fe 层界面处有正的同质异能位移,表明界面处 Fe 原子核附近 s 电子相对 Fe 膜减少,发生了转移,表明 Fe, Pd 间的相互作用可能与电子转移有关,相互作用的详细机制还有待进一步研究。由拟合结果还可发现不同的超晶格样品具有相同的同质异能位移和差不多的线宽,这与本文假设的仅仅 Fe 层界面处 Fe 原子参与 Pd 的极化, Fe 层内磁性与纯 Fe 膜相同的说法是一致的。这也从实验上证实极化效应的等效厚度  $d$ , 与 Fe 层厚度关系不大。

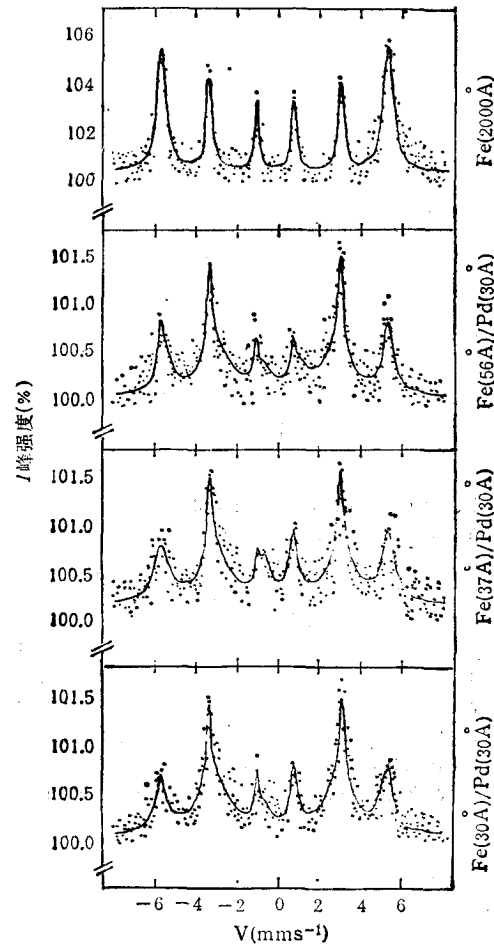


图 6 Fe/Pd 超晶格的 <sup>57</sup>Fe 的 CEMS

表 1 纯 Fe 膜和 Fe/Pd 超晶格  $^{57}\text{Fe}$  的 CEMS 的拟合结果

	$H_{hf}(\text{kOe})$	IS(mm/s)	线宽 (mm/s)
Fe ( $\text{\AA}$ )	330	0.00	0.20
56	330.7	0.020	0.20
	322.8	0.153	0.53
37	330.8	0.000	0.21
	324.9	0.152	0.60
30	332.3	0.010	0.20
	324.1	0.166	0.57

#### 四、结 论

通过对 Fe/Pd 超晶格磁性和 CEMS 测量及分析可得出如下结论:

1. 单位 Fe 体积的比饱和磁化强度随 Fe 层厚度减小而单调增大, 这是界面处 Fe 对 Pd 的极化造成的。0 K 下极化效应的等效 Fe 层厚度约为  $10 \text{\AA}$ 。

2. 在 77—300K 温区上  $\sigma-T$  关系满足 Bloch 的  $T^{3/2}$  定律, 自旋波劲度系数  $B$  随 Fe 层减薄而单调增大; 居里温度随 Fe 层减薄而单调下降。

3. CEMS 测量证实极化效应存在; 而界面处 Fe 原子不存在磁性增强和“死层效应”, 只是其磁性相对 Fe 层内部略有减弱。

刘宜华、张岳鲁、李卫东等老师在实验过程中给予热情帮助, 谨致衷心的感谢。

- [1] N. Hosoi, K. Kawaguchi, *J. Magn. Magn. Mat.*, 54-57(1986), 737.
- [2] Y. Kozono *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 61(8) (1987), 4311.
- [3] T. Katayama *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 55(1986), 539.
- [4] E. M. Gyorgy *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 45(1986), 57.
- [5] H. J. G. Draasima *et al.*, *J.* 66(1987), 351.
- [6] H. J. G. Draasima *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 61(8) (1987), 4317.
- [7] T. Moriya, *Prog. Theor. Phys.*, 34(1965), 329.
- [8] J. S. Kouvel and J. B. Forsyth, *J. Appl. Phys.*, 40(1969), 1359.
- [9] K. Schröder, *J. Appl. Phys.*, 57(1985), 3666.
- [10] G. J. Nieuwenhugs, *Adv. Phys.*, 24(1975), 24.
- [11] S. J. Glass and M. J. Klein, *Phys. Rev.*, 100(1985), 288.

## STUDIES OF THE MAGNETIC PROPERTIES AND $^{57}\text{Fe}$ CONVERSION ELECTRON MÖSSBAUER SPECTRUM OF THE METALLIC Fe/Pd SUPERLATTICES

LI MIN MEI LIANG-MO

*Department of Physics, Shandong University, Jinan 250100*

(Received 8 July 1991)

### ABSTRACT

The structural and magnetic properties of the two sources deposited Fe/Pd superlattices were studied. The samples were prepared by keeping the thickness of Pd layers  $d_{\text{Pd}}$  at 30 Å and varying  $d_{\text{Fe}}$  from 56 to 5.7 Å. The reduced saturation magnetization of Fe/Pd superlattices,  $\sigma$ , increased with the decrease of  $d_{\text{Fe}}$ , this was due to the polarization effect of Pd. The effective thickness of polarization effect  $d_i$  was found as about 10 Å at 0K. The temperature dependence of magnetization followed Bloch  $T^{3/2}$  law in the range of 7—300K and the spin-wave stiffness constant B increased with the decrease of  $d_{\text{Fe}}$ . The Curie temperature,  $T_c$  decreased with  $d_{\text{Fe}}$ . The  $^{57}\text{Fe}$  conversion electron Mössbauer spectrum illustrated that the polarization effect existed among the layers, and there were no magnetic enhancing effect and "dead layer effect" on the Fe atoms at the interfaces.

**PACC:** 7570; 6860; 7550K; 6865