

# Pd/Fe 和 PdFe/Fe 多层膜中的振荡行为\*

王 晶 王荫君 詹文山 赵宏武 沈保根

(中国科学院物理研究所与凝聚态物理中心磁学国家重点实验室, 北京 100080)

(1999 年 6 月 10 日收到; 1999 年 8 月 23 日收到修改稿)

采用磁控溅射法制备了 Pd/Fe 和  $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x/\text{Fe}$  多层膜. 利用变换梯度磁强计测量了样品的  $M_s$ . 发现层间耦合是铁磁性的,  $M_s$  具有长程振荡, 周期为 4 ML. 振荡的相位和周期在  $\text{Pd}_{0.966}\text{Fe}_{0.034}/\text{Fe}$  和  $\text{Pd}_{0.944}\text{Fe}_{0.056}/\text{Fe}$  系统中保持不变. 就 Pd/Fe 多层膜中是否存在内层的 Pd 负极化和长程的铁磁耦合振荡进行了讨论, 并分析了不同计算结果以及理论计算与实验结果之间存在差异的原因.

PACC: 7570; 7530E

## 1 引 言

近年来, 随着三明治和多层膜结构中反铁磁耦合的发现<sup>[1-5]</sup>, 以非磁性金属材料 Pd, Pt 等为间隔层的多层结构引起了人们的注意. 许多理论和实验研究表明, 在 Pd/Fe 多层膜中的 Pd 层存在着明显的诱导极化<sup>[6-12]</sup>. 文献[6, 7, 9, 13]分别研究了  $\text{Fe}(001)/\text{Pd}_n(001)/\text{Fe}(001)$  三明治和  $(001)\text{Fe}/\text{Pd}$  超晶格的层间耦合特性. 而文献[11, 14]则从理论上进行了计算.

在 Pd/Fe 多层膜的研究结果中, 不仅实验与理论之间存在着许多差异, 而且不同小组所得结果也不尽相同. 主要的焦点集中在当 Pd 层的原子层层数  $n_{\text{Pd}} > 4$  时, 在内层中是否有负极化的 Pd 原子以及在 Pd/Fe 系统中是否存在长程的铁磁性振荡. 为了弄清这些差异的物理来源以及杂质 Fe 的存在对 Pd/Fe 多层膜磁性的影响, 我们系统地研究了磁控溅射的 Pd/Fe 和  $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x/\text{Fe}$  ( $x = 0.034, 0.056, 0.071$ ) 多层膜的  $M_s$  随 Pd 层和 PdFe 层厚度变化的行为.

## 2 实 验

在氩气压为 1 Pa 的气氛下, 我们用磁控溅射法制备了  $(t \text{ Pd}_{1-x}\text{Fe}_x/3.01 \text{ nm Fe})_{20}/30 \text{ nm Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$  的多层膜, 其中  $t = 1.10-4.16 \text{ nm}$ ,  $x = 0, 0.034, 0.056, 0.071$ . 样品生长在 0.2 mm 厚的玻璃基片上, 溅射时基片用流动水进行冷却, 并且本底气压为  $5 \times 10^{-5}$

\* 国家自然科学基金(批准号: 19774072)和国家重点基础研究发展规划(批准号: G1998061300)资助的课题.

Pa. 通过预置的计算机程序控制溅射时间来实现每一层的厚度控制. Pd 层中 Fe 的掺杂比例的变化通过改变组合靶中 Fe 和 Pd 的面积比来实现.

用诱导耦合等离子-原子发射光谱仪确定 Pd 层中 Fe 的含量. 用 X 射线衍射 (CuK $\alpha$  靶) 分析了样品的调制特性和晶体结构. 用变换梯度磁强计 (AGM) 测量室温下样品的饱和磁化强度. 考虑到系统误差的因素,  $M_s$  的误差不超过 5%. 我们可以从测量的磁滞回线确认相邻 Fe 层的磁矩呈平行排列.

### 3 结果及讨论

图 1 和图 2 分别给出了  $t = 1.10\text{--}4.16$  nm 时样品的小角衍射谱和大角衍射谱. 在所有样品中均有 2—4 个小角峰清晰可见, 这表明制备的样品具有很好的层状结构. 在大角衍射谱中, Pd(111) 出现在  $2\theta = 40.1^\circ$  处, 表明与用分子束外延制备的超晶格不同<sup>[6-9]</sup>, 在磁控溅射的多层膜中没有膨胀的 Pd(001) 晶格出现. 从图 1 和图 2 还可以看出, 当 Fe 掺到 Pd 层里面后, 层状结构没有明显的变化并且没有任何 Fe 和 Fe 合金峰出现.

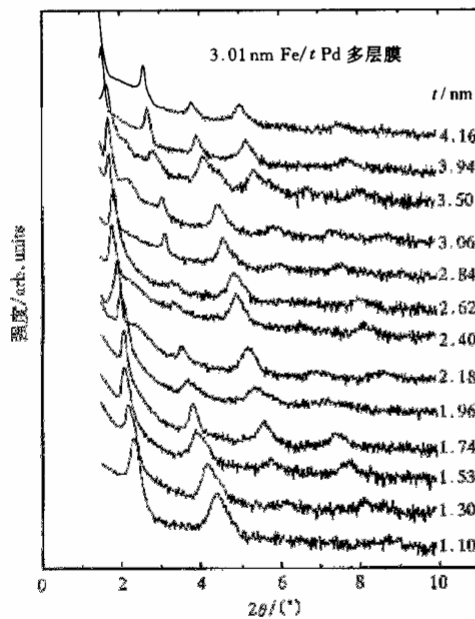


图 1 3.01 nm Fe/ $t$  Pd 多层膜的小角 X 射线衍射谱  
 $t_{\text{Pd}} = 1.10\text{--}4.16$  nm

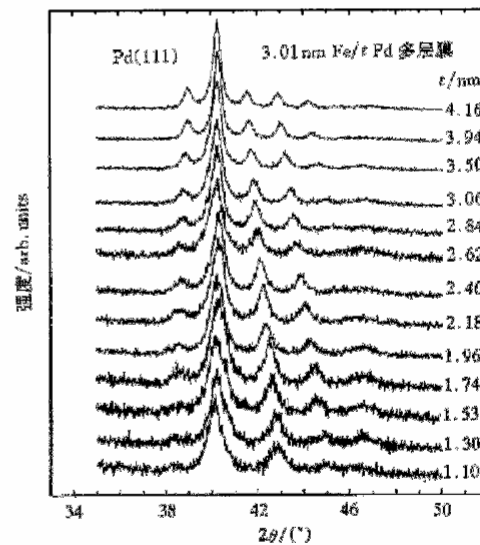


图 2 3.01 nm Fe/ $t$  Pd 多层膜的大角 X 射线衍射谱  
 $t_{\text{Pd}} = 1.10\text{--}4.16$  nm

图 3 给出了对整个 Fe 层取平均后的饱和磁化强度  $M_s$  随 Pd 原子层层数  $n_{\text{Pd}}$  变化的关系曲线. 由图 3 可看出层间交换耦合是铁磁性的, 并且随着  $n_{\text{Pd}}$  的增加  $M_s$  有明显的振荡, 其周期大约为 4 ML. 这个值与 Celinski 小组在三层结构的 5.7 ML Fe/ $n$  ML Pd/9.6 ML Fe ( $n = 5\text{--}18$ ) 中测得的交换耦合常数  $J$  随 Pd 层厚度振荡的周期值符合得很好. 为

了比较方便,我们在图3中同时还给出了文献[9,13]的结果.

从图3中还可以看出,Pd/Fe的 $M_s$ 比块体Fe的要大.一般认为,这里饱和磁化强度的增强是Pd层的极化所引起.为了详尽阐述这个问题,我们从总的饱和磁化强度中扣去Fe层( $\mu_{Fe}=2.2\mu_B$ )和缓冲层的贡献,然后平均到每个Pd原子上.图4给出了计算后的 $\mu_{Pd}$ 平均值.可以看到 $\mu_{Pd}$ 和 $M_s$ 同样随Pd层厚度的增加而振荡.因此,我们可以把 $M_s$ 的振荡归因于Pd/Fe多层膜中的极化效应,而这种振荡揭示在内层的Pd原子中存在负极化.这个结果和假定Pd具有常数原胞体积(constant atomic volume)或膨胀原胞体积(expand atomic volume)结构的理论计算结果大不相同<sup>[14,15]</sup>.从图4可以看出,理论计算结果在CAV情形Pd的极化只存在界面上,而在EAV的假定下Pd的极化磁矩保持不变.

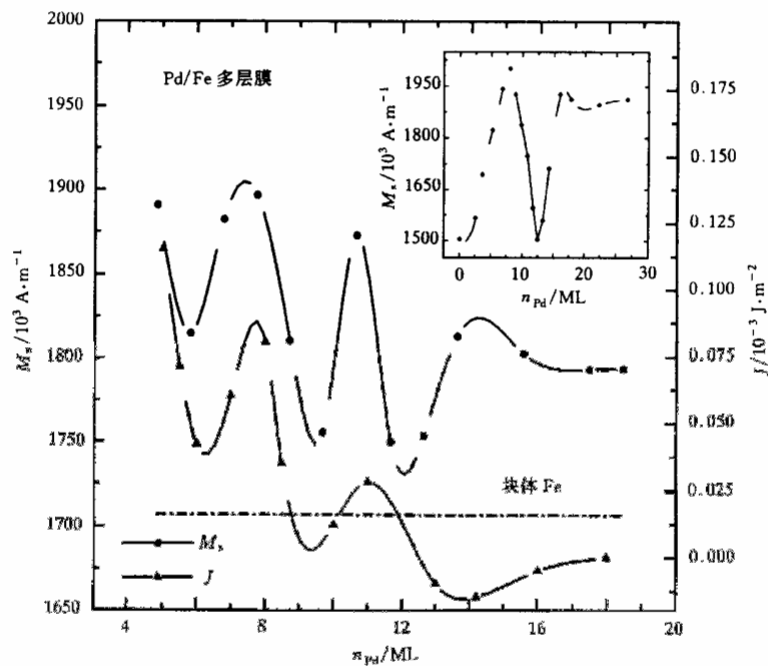


图3 12 ML Fe/ $n$  ML Pd多层膜中平均饱和磁化强度 $M_s$ 随Pd原子层层数 $n_{Pd}$ 的变化关系  $J$ - $n_{Pd}$ 关系图引自文献[9],插图中的数据引自文献[13]

通过比较发现,我们的结果与Celinski等<sup>[6,9]</sup>的结果比较接近,两者都得到具有相同周期和相位的振荡行为,且都发现在内层Pd中存在负极化.但是在我们的结果中没有出现反铁磁耦合,这一点与Celinski等的结果不同,而且在他们的样品中每个Pd原子的磁矩为 $0.25\mu_B$ (这与理论计算的结果吻合),小于我们所得到的 $0.6\mu_B$ .然而 $0.6\mu_B$ /Pd原子与Childress<sup>[7]</sup>以及李明等<sup>[13]</sup>的结果相符.我们估计,在磁控溅射样品中Pd原子磁矩较大可能是由于Fe在Fe-Pd界面上的扩散引起的<sup>[7]</sup>.

我们知道,由于Fe原子和Pd原子d轨道的杂化,在Pd/Fe系统中毗邻Fe层的Pd原子被Fe原子铁磁诱导极化.而对内层的Pd原子,则可以用RKKY交换作用来描述.位于

界面上的 Fe 和 Pd 之间的 d-d 直接交换作用比间接的 RKKY 交换作用要强, 而且间接交换作用的强度随间隔层的厚度振荡地衰减. 因此可以预料 Pd 的极化从负极化向正极化转变(反之亦然)只发生在内层. 通过对内层 Pd 的极化调制, 相邻 Fe 层之间的耦合随 Pd 层的厚度振荡. 这正是我们在图 3 和图 4 中所看到的, 直接和间接交换作用共同决定了饱和磁化强度的振荡.

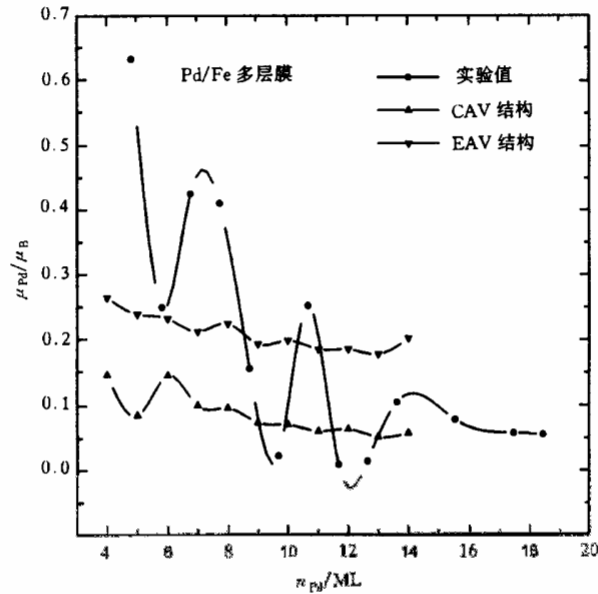


图 4 实验所得  $\mu_{Pd}$  和  $n_{Pd}$  之间的关系. 理论计算的  $\mu_{Pd}$  与  $n_{Pd}$  关系引自文献[14]

在磁控溅射的 Pd/Fe 多层膜中, Pd 和 Fe 分别在界面处的扩散比用分子束外延制备的样品都要更容易. 而在理论计算中一般都假定界面光滑. 由于界面处的极化对内层 Pd 的极化有影响, 我们可以预期不同研究小组的结果以及实验与理论之间会有差异.

图 5 给出了  $Pd_{1-x}Fe_x/Fe$  多层膜 ( $x = 0.034, 0.056, 0.071$ ) 中平均饱和磁化强度随 PdFe 层厚度的变化曲线, 缓冲层对  $M_s$  的贡献已经预先扣除. 从图 5 中我们可以看出,  $x = 0.034, 0.056$  时, 样品具有与 Pd/Fe 多层膜相同相位和周期的振荡曲线. 而当 Fe 在 Pd 层中的掺杂量达到 0.071 时, 振荡的相位和周期的数目都发生了明显的变化. 这表明在 Pd/Fe 多层膜中占主导地位的交流作用在  $x = 0.034, 0.056$  时仍然起主要作用, 而当  $x = 0.071$  时, Pd 层中杂质 Fe 之间的交换作用则变得更重要. 这也从另一方面证实了 Pd/Fe 多层膜中的长程振荡现象并非由于少量的 Fe 扩散引起, 而是由于交换耦合所致.

如我们假定 Fe 层之间通过 PdFe 层的相互作用以及 Pd 层中杂质 Fe 之间的作用都可以用 RKKY 相互作用进行描述, 只要知道 Fe 的掺杂量, 则 PdFe/Fe 多层膜中的耦合原则上可以计算出来, 从而可以推知内层 Pd 的自旋排列<sup>[16]</sup>.

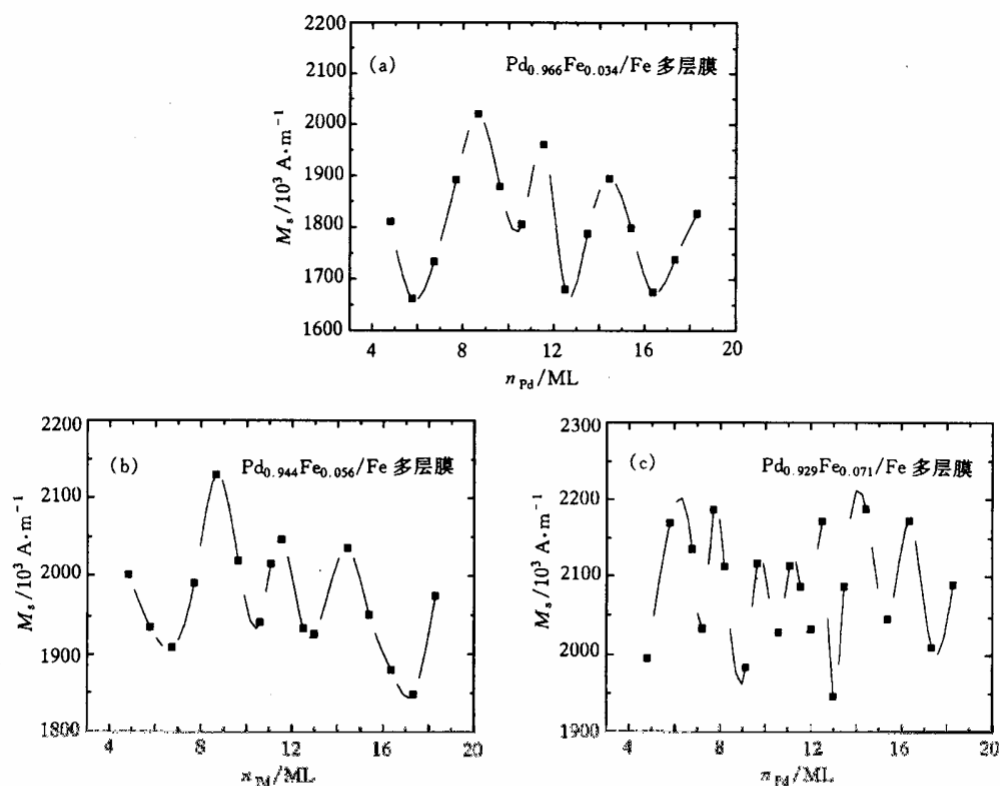


图 5  $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x/\text{Fe}$  多层膜中平均饱和磁化强度  $M_s$  随 Pd 原子层层数  $n_{\text{Pd}}$  的变化关系  $x = 0.034, 0.056, 0.071$

- [1] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.*, **57**(1986), 2442.
- [2] S. S. P. Parkin, N. More, K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.*, **64**(1990), 2304.
- [3] W. R. Bennett, W. Schwarzacher, W. F. Egelhoff Jr., *Phys. Rev. Lett.*, **65**(1990), 3169.
- [4] S. S. P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.*, **67**(1991), 3598.
- [5] P. Bruno, C. Chappert, *Phys. Rev. Lett.*, **67**(1991), 1602; **E67**(1991), 2592; *Phys. Rev.*, **B46**(1992), 261.
- [6] Z. Celinski, B. Heinrich, J. F. Cochran, W. B. Muir, A. S. Arrott, J. Kirschner, *Phys. Rev. Lett.*, **65**(1990), 1156.
- [7] J. R. Childress, R. Kergoat, O. Durand, J. M. George, P. Galtier, J. Miltat, A. Schuhl, *J. Magn. Magn. Mater.*, **130**(1994), 13.
- [8] P. J. H. Bloemen, W. J. M. de Jonge, H. C. Dankersloot, *J. Magn. Magn. Mater.*, **121**(1993), 279.
- [9] Z. Celinski, B. Heinrich, *J. Magn. Magn. Mater.*, **99**(1991), L25.
- [10] C. Liu, S. D. Eder, *Physica*, **B161**(1989), 253.
- [11] S. Blugel, B. Drittler, R. Zeller, P. H. Dederichs, *Appl. Phys.*, **A49**(1989), 457.
- [12] W. Weber, D. A. Wesner, G. Güntherodt, U. Linke, *Phys. Rev. Lett.*, **66**(1991), 942.
- [13] M. Li, X. D. Ma, C. B. Peng, J. G. Zhao, L. M. Mei, Y. H. Liu, Y. S. Gu, W. P. Chai, Z. H. Mai, B. G. Shen, D. S. Dai, *J. Appl. Phys.*, **77**(1995), 3965; *Phys. Rev.*, **B50**(1994), 10323.
- [14] D. Stoeffler, K. Ounadjela, J. Sticht, F. Gautier, *Phys. Rev.*, **B49**(1994), 299.
- [15] H. Nait-Laziz, S. Bouarab, C. Demangeat, A. Mokrani, H. Dreyse, *J. Magn. Magn. Mater.*, **118**(1993), 365.
- [16] Y. J. Wang, M. Zheng, J. Li, H. Kronmüller, *Phys. Rev.*, **B58**(1998), 3228.

## OSCILLATING BEHAVIOR OF MAGNETIZATION IN Pd/Fe AND DILUTE PdFe/Fe MULTILAYERS\*

WANG JING WANG YIN-JUN ZHAN WEN-SHAN ZHAO HONG-WU SHEN BAO-GEN

(State Key Laboratory for Magnetism, Institute of Physics and Center for Condensed Matter Physics,  
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080)

(Received 10 June 1999; revised manuscript received 23 August 1999)

### ABSTRACT

Pd<sub>1-x</sub>Fe<sub>x</sub>/Fe multilayers (MLs) with  $x = 0, 0.034, 0.056, 0.071$  have been prepared by magnetron sputtering. The measurement of saturation magnetization in Pd/Fe MLs in the range of Pd thickness from 4 to 18 ML shows that the interlayer couplings are ferromagnetic and  $M_s$  possesses a long-range oscillation with a period of 4 ML Pd. The oscillation phase and period in Pd<sub>0.966</sub>Fe<sub>0.034</sub>/Fe and Pd<sub>0.944</sub>Fe<sub>0.056</sub>/Fe multilayers remain unchanged as compared with their reference Pd/Fe multilayers. A discussion is given about discrepancy between theory and experiments, concerning with whether a negative polarization of Pd in inner spacer and a long-range ferromagnetic oscillation appears in Pd/Fe systems.

PACC: 7570; 7530E

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 19774072) and the State Key Program of Basic Research of China (Grant No. G1998061300).