

# 超薄 Fe(4 Å)膜磁特性极化中子反射研究

李天富<sup>1)</sup> 陈东风<sup>1)</sup> 王洪立<sup>1)</sup> 孙 凯<sup>1)</sup> 刘蕴韬<sup>1,2)†</sup>

1) 中国原子能科学研究院, 北京 102413)

2) 德国柏林 HMI 研究所, 柏林 D-14109)

(2009 年 1 月 15 日收到, 2009 年 3 月 25 日收到修改稿)

利用分子束外延薄膜生长技术, 制备了 200 Å V/4 Å Fe/900 Å V/MgO(100) 薄膜样品, 通过 X 射线反射和极化中子反射两种测量手段获得了薄膜的表面、界面及各层膜厚的相关结构信息. 中子反射结果表明, Fe 原子磁矩在室温下约为  $1.0 \pm 0.1 \mu_B$ . 随着温度的降低, Fe 原子磁矩增加, 在 10 K 时达到  $1.5 \pm 0.1 \mu_B$ . 利用指数定律拟合磁矩随温度的变化情况, 外推得出 4 Å 铁薄膜样品的居里温度约为  $310 \pm 30$  K.

关键词: 超薄 Fe 膜, 磁特性, 极化中子反射, 分子束外延

PACC: 7570, 6112D

## 1. 引 言

磁性超薄膜在低维尺度表现出来的不同于块体材料的特异磁性能, 使得其无论在基础理论研究方面还是实际应用方面都有十分重要的研究价值, 因此成为广大科研人员研究的热点<sup>[1-6]</sup>. 尤其是当前人们不断追求设计出具有更高存储密度的信息存储设备, 小尺度、低维度以及表面边缘效应的影响变得越来越重要, 研究认识超薄膜的磁特性就变得非常关键<sup>[1,2]</sup>. 近年来发展起来的分子束外延生长法, 可在超高真空下生长出厚度仅为几个原子层的优质单晶薄膜样品, 为开展这方面的实验研究工作提供了强有力的支持. 同时, 目前可用于薄膜磁性研究的手段也很多, 例如振动样品磁强计、极化中子反射谱仪、超导量子干涉仪、X 射线磁性圆二色(X-ray magnetic circular dichroism, XMCD) 技术、磁光克尔谱仪等等<sup>[1]</sup>. 其中, 由于中子具有磁矩, 极化中子在用于获知薄膜的表面、界面及薄膜厚度等信息的同时, 还可用以测得原子绝对磁矩<sup>[6]</sup>, 因此是磁性薄膜研究的理想探针.

近年来, 超薄 Fe 膜因特有的性能而备受关注, 但不同条件下得出的 Fe 膜磁性质却不尽相同<sup>[1]</sup>. 例如, Freeman 等<sup>[8]</sup>理论计算得出, Fe, V 等原子磁矩值随着维度的降低而升高; Bland 等发现 Ag 衬底上约

6 个单层厚的铁原子平均磁矩有 12%—20% 的增加<sup>[9]</sup>. Adenwalla 等<sup>[10]</sup>发现在 MgO 上生长的厚度小于五个单层的 Fe 薄膜不是铁磁性的, 而是具有超顺磁性. Wang 等发现在 NiO 上的超薄 Fe 膜会产生磁性死层<sup>[3]</sup>. Fritzsche 和 Liu 等<sup>[11,12]</sup>研究了 V(100) 上生长的不同厚度 Fe 薄膜, 结果显示 Fe/V 界面处 Fe 原子平均磁矩降低约  $0.7 \mu_B$ . 可见, 超薄铁膜磁性质对周围的环境比较敏感, 不同的衬底以及覆盖层可能导致完全不同的薄膜磁性. 目前, 超薄铁膜的磁性质仍是人们研究的热点之一.

本工作采用分子束外延方法, 在 V(100) 的单晶衬底上制备了厚度仅为 4 Å 的优质单晶 Fe 薄膜, 然后利用极化中子反射谱仪, 研究其中铁原子的磁矩及其随温度的变化情况.

## 2. 样品制备

薄膜样品是利用德国柏林 HMI 研究所分子束外延生长设备制备完成的, 生长过程中的真空度达  $10^{-8}$  Pa. V 的中子散射长度很小, 选用其作衬底材料非常有利于分析极化中子反射中超薄 Fe 膜磁散射的贡献, 从而获知铁原子磁矩的大小. 但通常纯净的 V 单晶很难获得<sup>[13-15]</sup>, 因此本实验采用在单晶 MgO(100) 上利用分子束外延技术生长法, 来获得具有较高结晶质量且纯净的单晶 V(100), 厚度 900 Å. 具体

† 通讯联系人, E-mail: ytliu@ciae.ac.cn

制备过程如下.

将预先清洁处理过的  $\text{MgO}(100)$  基底放到生长室内,真空状态下在 1100 K 退火 15 min,用氩离子束溅射约 20 s 去除表面杂质,再在 1000 K 退火 30 min,俄歇电子能谱(AES)检测结果表明得到了洁净的  $\text{MgO}$  基底.然后以  $1 \text{ \AA/s}$  的速度在室温下生长厚度约为  $860 \text{ \AA}$  的 V,1000K 下退火 30 min,温度降至室温后,继续生长约  $40 \text{ \AA}$  的 V,AES 和低能电子衍射(LEED)检测结果表明制备的  $\text{V}(100)$  洁净且具有较好的结晶质量(结果见图 1).

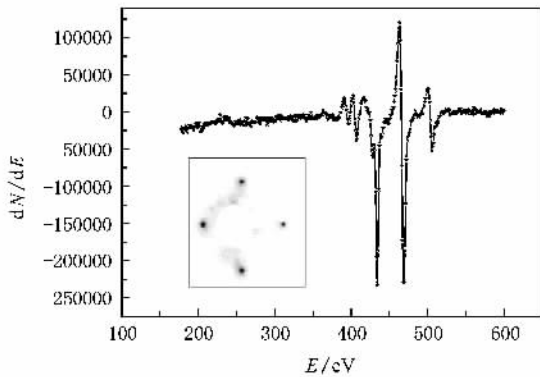


图 1 衬底层  $\text{V}(100)$  的俄歇电子谱(插图为低能电子衍射谱)

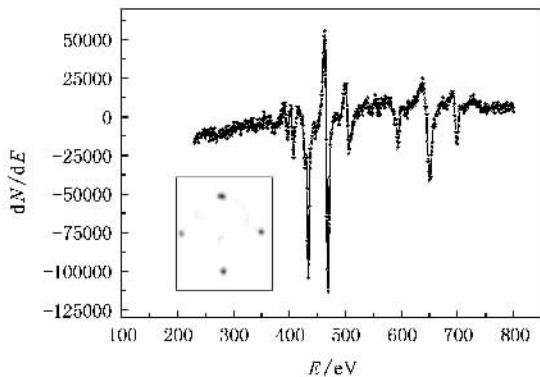


图 2  $\text{Fe}(100)$  的俄歇电子谱(插图为低能电子衍射谱)

接下来便是在  $\text{V}(100)$  上生长制备  $\text{Fe}$  膜。 $\text{Fe}$  膜的生长速度为  $0.1 \text{ \AA/s}$ ,生长厚度为  $4 \text{ \AA}$ 。同样,对  $\text{Fe}$  膜进行的 LEED 和 AES 原位检测也表明其具有很好的结晶质量和纯净度(结果见图 2)。其中,AES 的结果中除了铁的峰外,仍然有来自衬底 V 的峰.这是因为俄歇电子能够穿透仅厚  $4 \text{ \AA}$  的铁膜。

最后以  $1 \text{ \AA/s}$  的速度生长厚  $200 \text{ \AA}$  左右的 V 作为保护层,以避免因  $\text{Fe}$  膜与空气接触氧化而影响其磁性.最终制备得到了薄膜样品  $200 \text{ \AA V}/4 \text{ \AA Fe}/900 \text{ \AA V}/\text{MgO}(100)$ 。

此外,利用 X 射线衍射仪分别测得了对应 V 和 Fe 的  $(200)$  峰的摆动曲线(图 3),以进一步评估样品的单晶生长质量.实验拟合得到 V 和 Fe 的峰半高宽(FWHM)分别约为  $0.19^\circ$  和  $0.06^\circ$ 。V 的衍射峰宽大于 Fe,分析认为是由于 V 衍射峰来自于覆盖层和衬底层两部分,而两部分的晶体取向不完全一致.而较小的 Fe 的峰半高宽,进一步验证了 LEED 的测试结果,即制备出了优质的单晶  $\text{Fe}$  薄膜。

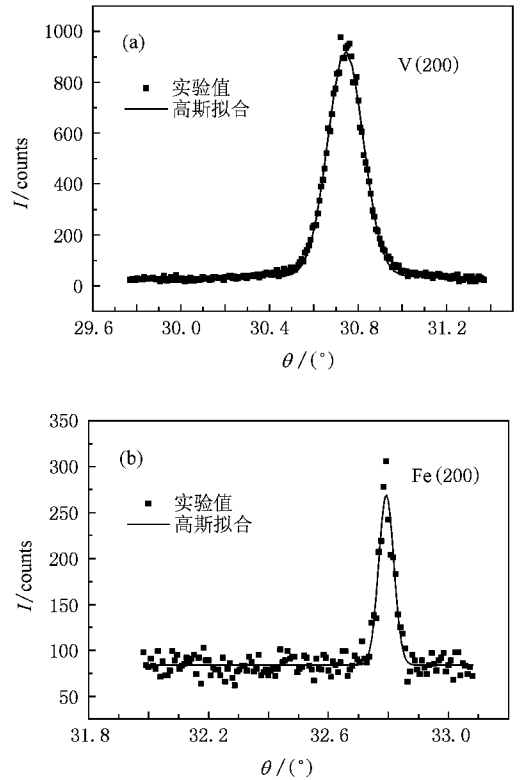


图 3  $\text{V}(200)$ (a)和  $\text{Fe}(200)$ (b)峰的 X 射线摆动曲线

### 3. 实验测量与分析讨论

实验测量在德国柏林哈迈研究所极化中子反射谱仪  $\text{V6}^{[16]}$  上完成.反射仪为垂直散射几何,单色器选用热解石墨,入射中子波长  $\lambda$  为  $4.66 \text{ \AA}$ ,次级中子由 Be 过滤器去除.单色的中子束通过铜片制成的狭缝实现准直,中子的极化由中子极化超镜实现,而不同自旋状态中子的获得则由自旋倒相器完成,中子极化率可达到  $98.5\%$ .探测器为  $\text{He}^3$  正比计数管,对波长为  $4.66 \text{ \AA}$  的中子的探测效率超过  $90\%$ .样品被放置在低温装置的样品托架上,位于电磁铁的中心位置,样品表面与电磁铁产生的磁场方向平行, $\text{Fe}$  的易磁化方向与磁场方向一致.电磁铁产生的  $0.25$

T 的磁场,可保证样品达到饱和磁化.通过改变入射束与样品表面的夹角  $\theta$  并测量反射束与入射束的强度之比,可测得反射率  $R$  随散射矢量  $Q = 4\pi\sin\theta/\lambda$  的变化.

在 10 K, 100 K, 200 K 和 295 K 四个温度下对样品进行了极化中子反射测量.样品放置于低温装置中,低温装置置于中子反射仪上.低温装置达到设定温度并平衡约 0.5 h 后,进行实验测量.值得注意的是,由于热胀冷缩效应,温度改变会使样品位置轻微偏移.因此,每次温度改变后,样品的高度以及  $\theta$  的零点位置都做了重新校准.中子反射的测量结果这里以温度为 10 K 时为例,示于图 4.

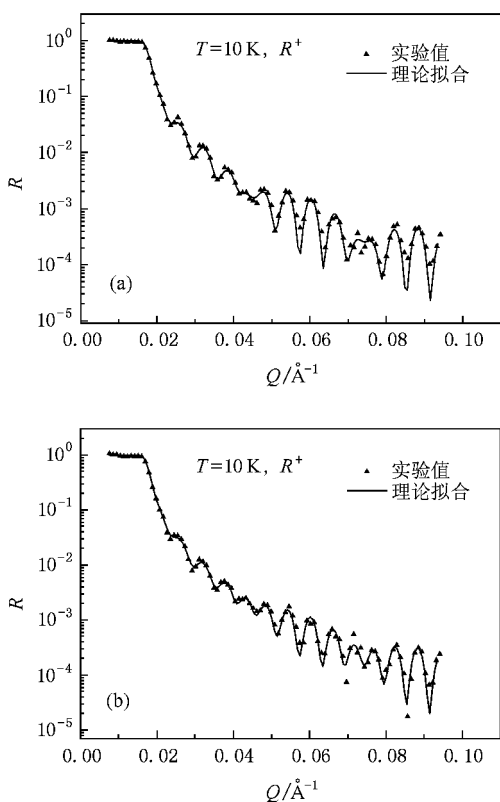


图 4 极化中子反射率曲线实验和理论拟合图(10 K) (a)入射中子自旋方向与外磁场方向平行时反射率(表示为  $R^+$ )曲线;(b)入射中子自旋方向与外磁场方向反平行时反射率(表示为  $R^-$ )曲线

X 射线反射与中子反射具有互补性,也应用于该样品的测量,两种手段的结合分析,有利于更精确测定薄膜的结构.室温下,测量得到 X 射线反射率曲线见图 5.

需要指出,当角度  $\theta$  很小时,入射束在样品面上的投影大于样品的表面,入射到样品上的束强度不是整个入射束的强度.此时,要将实验测得入射束

强度除以  $\sin\theta$  作重新归一化,然后计算得出反射率曲线  $R(Q)$ .

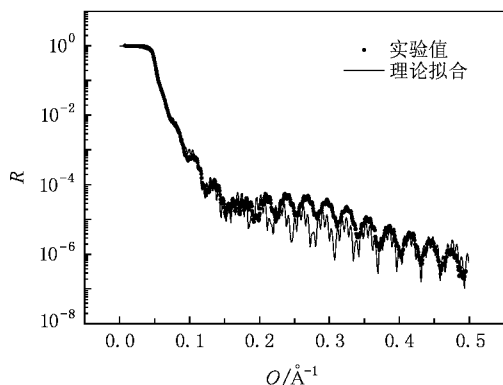


图 5 X 射线反射率曲线实验和理论拟合图

中子和 X 射线反射的实验数据分析处理是利用 Parratt<sup>[17]</sup>软件来完成的,拟合结果见图 4 和图 5,可以看出实验和理论值符合较好.如前所述,X 射线反射与中子反射具有互补性,在这里 X 射线反射可以测到较高的  $Q$ ,对表面氧化层以及界面粗糙度较灵敏,而中子反射能获得磁散射信息,同时对 V 与 Fe 有较好区别能力.综合分析拟合中子反射与 X 射线反射数据,得出相关结构参数的最佳值(见表 1).可以看出,V 保护层发生了氧化,氧化产物为  $\text{V}_2\text{O}_3$ ,厚度为 12 Å,而保护层的厚度为 200 Å,所以 Fe 原子没有受到氧原子的影响.分析中子在各个温度下自旋向上和自旋向下反射率曲线的不同,可以得到该温度下 Fe 原子磁矩大小.不同自旋取向中子反射率曲线的差异,通常以自旋非对称函数来表示,定义为

$$\text{Asym} = \frac{R^+ - R^-}{R^+ + R^-}, \quad (1)$$

其中,  $R^+$  代表入射中子自旋方向与外磁场方向平行

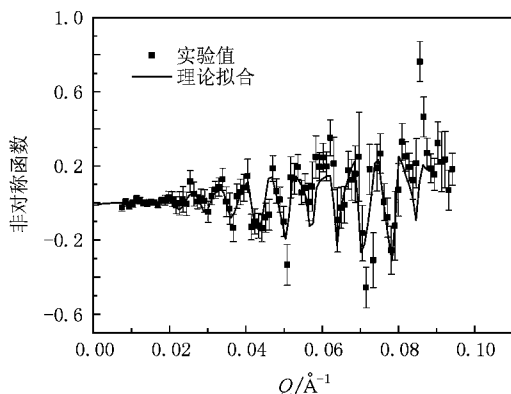


图 6 自旋非对称函数(10 K)

反射率,  $R^-$  代表入射中子自旋方向与外磁场方向反平行时反射率.  $A_{\text{sym}}$  对样品的磁性敏感, 能直观反映出磁矩对反射率的贡献. 样品在 10 K 温度下中子的自旋非对称数据及其理论拟合见图 6. 利用 Parratt 方法拟合反射率曲线并对分析自旋非对称函数  $A_{\text{sym}}$  的实验值和理论计算值, 我们得到不同温度下 Fe 原子的磁矩值(见表 2). 可以看出, 铁原子的磁矩值小于其在块体材料中的值.

表 1 薄膜结构信息拟合结果

成分	MgO	V	Fe	V	V <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
层厚/Å	—	905	4	201	12
界面粗糙度/Å	2	2	1	1.5	5.6

表 2 不同温度下 Fe 原子磁矩值

温度/K	10	100	200	295
Fe 原子磁矩/ $\mu_B$	$1.5 \pm 0.1$	$1.5 \pm 0.1$	$1.3 \pm 0.1$	$1.0 \pm 0.1$

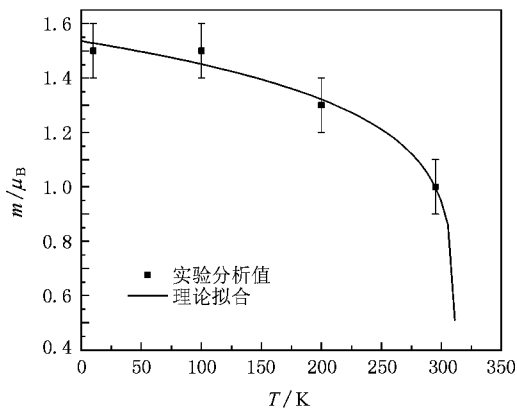


图 7 铁原子磁矩随温度的变化

铁原子磁矩( $m$ )随温度( $T$ )变化, 可以利用指

数定律  $m(T) = m_0(1 - T/T_c)^{\beta}$  进行拟合, 结果见图 7. 拟合得出 4 Å Fe 薄膜居里温度  $T_c = 310 \pm 30$  K, 小于块体状态铁的值, 而  $m_0 = 1.5 \pm 0.1 \mu_B$ . 居里温度的降低, 说明超薄铁膜的磁有序更易被热扰动打破, 这可能是由于维度的降低造成铁原子的近邻铁原子数减少从而使原子间相互作用减弱. 需要指出, 该指数定律适用于远离居里温度点<sup>[18]</sup>, 但作为一种对居里温度的估算方法应该是可行的.

## 4. 结 论

本工作利用分子束外延方法生长制备了 200 Å V/4 Å Fe/905 Å V/MgO(100) 薄膜样品. 原位 AES, LEED 监测结果显示所制备的 Fe 薄膜具有较好的纯净度和结晶质量. X 射线摆动曲线测量得到 Fe(200) 峰的半高宽仅为  $0.06^\circ$ , 进一步表明 Fe 膜具有很好的结晶质量. 通过分析处理 X 射线反射谱仪和极化中子反射谱仪测得的反射数据, 较为精确地获得了薄膜的表面、界面及各层膜厚等相关结构信息. 分析拟合不同温度下极化中子反射率曲线以及自旋非对称函数  $A_{\text{sym}}$ , 获得了超薄铁膜原子在各个温度下的绝对磁矩. 结果显示, 在室温下 4 Å Fe 薄膜中 Fe 原子磁矩约为  $1.0 \pm 0.1 \mu_B$ , 低于其在块体材料中的值. 随着温度的降低, Fe 原子磁矩有所增加, 在 10 K 时增为  $1.5 \pm 0.1 \mu_B$ . 利用指数定律拟合磁矩随温度的变化情况, 估算出 4 Å 薄膜样品的居里温度约为  $310 \pm 30$  K.

感谢加拿大 Chalk River 实验室 H. Fritzsche 博士, 德国 HMI 研究所 J. Hauschild 博士及 H. Maletta 教授等人对本工作的支持与帮助.

[1] Vaz C A F, Bland J A C, Lauhoff G 2008 *Rep. Prog. Phys.* **71** 056501  
 [2] Matsui F, Matsushita T, Kato Y, Hashimoto M, Inaji K, Guo F Z, Daimon H 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 207201  
 [3] Wang L J, Teng J, Yu G H 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 4282 (in Chinese)[王立锦、滕 蛟、于光华 2006 物理学报 **55** 4282]  
 [4] Lu Y F, Przybylski M, Wang W H, Yan L, Shi Y S, Barthel J 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 5450 (in Chinese)[卢亚锋、Przybylski M、王文宏、闫 龙、石一生、Barthel J 2005 物理学报 **54** 5450]  
 [5] Wang H Y, Zhou Y S, Wang C Y, Lin D L 2002 *Chin. Phys.* **11** 167

[6] Zhou Y S, Xie D, Chen J C, 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]  
 [7] Ankner J F, Felcher G P 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 741  
 [8] Freeman A J, Wu R Q 1992 *J. Magn. Magn. Mater.* **104** 1  
 [9] Bland J A C, Daboo C, Heinrich B, Celinski Z, Bateson R D 1995 *Phys. Rev. B* **51** 258  
 [10] Adenwalla S, Yongsup Park, Felcher G P, Teitelman M 1994 *J. Appl. Phys.* **76** 6443  
 [11] Fritzsche H, Liu Y T, Hauschild J, Maletta H 2004 *Phys. Rev. B* **70** 214406

- [ 12 ] Liu Y T , Fritzsche H , Hauschild J , Maletta 2004 *Physica B* **350** e225
- [ 13 ] Adams D L , Nielsen H B 1981 *Surf. Sci.* **107** 305
- [ 14 ] Valla T , Pervan P , Milun M 1994 *Surf. Sci.* **843** 307
- [ 15 ] Nawrath T , Fritzsche H , Maletta H 1998 *Surf. Sci.* **414** 209
- [ 16 ] Mezei F , Golub R , Klose F , Toews H 1995 *Physica B* **898** 213
- [ 17 ] Christian Braun 1999 Parratt32 Hahn-Meitner-Institut Berlin
- [ 18 ] Kohlhepp J , Elmers H J , Cordes S , Gradmann U 1992 *Phys. Rev. B* **45** 12287

## Magnetic properties of ultrathin ( 4 Å )Fe film studied by polarized neutron reflectometry

Li Tian-Fu<sup>1)</sup> Chen Dong-Feng<sup>1)</sup> Wang Hong-Li<sup>1)</sup> Sun Kai<sup>1)</sup> Liu Yun-Tao<sup>1) 2) †</sup>

<sup>1</sup> *China Institute of Atomic Energy , Beijing 102413 , China*

<sup>2</sup> *Hahn-Meitner-Institut , Berlin D-14109 , Germany*

( Received 15 January 2009 ; revised manuscript received 25 March 2009 )

### Abstract

Ultrathin Fe film 200 Å V/4 Å Fe/900 Å V/MgO( 100 ) has been prepared by molecular beam epitaxy( MBE ). The structure parameters , such as the surface and interface roughness and the thickness of each layer , were obtained by X-ray and neutron reflectivity measurement. The magnetic properties of the thin Fe layer were investigated by polarized neutron reflectometry at different temperature. The result shows that the magnetic moment of an Fe atom is about  $1.0 \pm 0.1 \mu_B$  at room temperature and increases to  $1.5 \pm 0.1 \mu_B$  at 10 K. The Curie temperature of the thin Fe film is estimated to be  $310 \pm 30$  K.

**Keywords** : ultrathin Fe film , magnetic properties , polarized neutron reflectometry , molecular beam epitaxy

**PACC** : 7570 , 6112D