

Магнитные состояния многослойных структур Fe/Cr со сверхтонкими слоями железа

А.Б. Дровосеков, Н.М. Крейнес, Д.И. Холин

Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН, ул. Косыгина, 2, г. Москва, 119334, Россия

E-mail: kreines@kapitza.ras.ru

Статья поступила в редакцию 12 февраля 2010 г.

Изучалась эволюция магнитных свойств сверхрешеток Fe/Cr при уменьшении номинальной толщины слоев железа вплоть до атомных величин, когда эти слои уже не являются сплошными. Исследования проведены на многослойных образцах с толщиной Fe в диапазоне 2–6 Å при толщинах прослоек хрома 10 и 20 Å. Образцы приготовлены методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Проведены измерения статической намагниченности, комплексной магнитной восприимчивости и спектров ФМР. Обнаружено, что в зависимости от толщины слоев Fe и температуры в системе реализуются различные магнитные фазы: суперпарамагнитная, магнитоупорядоченная, а также неэргодичное состояние, характеризующееся зависимостью намагниченности образца от его магнитной предыстории. Показано, что наблюдаемая неэргодичная фаза проявляет свойства спинового стекла. Построена качественная фазовая диаграмма магнитных состояний исследуемой системы.

Вивчалася еволюція магнітних властивостей надграток Fe/Cr при зменшенні номінальної товщини шарів заліза аж до атомних величин, коли ці шари вже не є суцільними. Дослідження проводилися на багатослов'язких зразках з товщиною Fe у діапазоні 2–6 Å при товщинах прошарків хрому 10 та 20 Å. Зразки приготувано методом молекулярно-променевої епітаксії. Проведено виміри статичної намагніченості, комплексної магнітної сприйнятливості та спектрів ФМР. Виявлено, що залежно від товщини шарів Fe та температури у системі реалізуються різні магнітні фази: суперпарамагнітна, магнітоупорядкована, а також неергодичний стан, який характеризується залежністю намагніченості зразка від його магнітної передісторії. Показано, що неергодична фаза, яка спостерігається, проявляє властивості спінового скла. Побудовано якісну фазову діаграму магнітних станів системи, яка досліджується.

PACS: 75.50. Lk Спиновые стекла и другие неупорядоченные магнетики;

75.50. Tt Системы малых частиц; нанокристаллические материалы;

75.70. Cu Магнитные свойства границ (многослойные структуры, сверхрешетки, гетероструктуры).

Ключевые слова: многослойные структуры, суперпарамагнетизм, спиновое стекло.

1. Введение

В последние годы внимание исследователей своими необычными физическими свойствами привлекают системы, состоящие из совокупности мелких магнитных частиц. Даже в отсутствие межчастичных взаимодействий ансамбль наноразмерных однодоменных магнитных частиц проявляет свойства, промежуточные между парамагнетиком и макроскопическим ферромагнетиком. Более того, наличие случайных межчастичных взаимодействий в системе может приводить к реализации фазы спинового (кластерного) стекла — коллективных неупорядоченных магнитных состояний.

Несмотря на довольно обширные экспериментальные и теоретические исследования спин-стеклового состояния (см., например, обзоры [1–3]), изучение свойств этой необычной магнитной фазы, особенно в кластерных системах, по-прежнему привлекает внимание.

Одним из возможных способов реализации указанных магнитных систем является создание многослойных магнитных структур — сверхрешеток, состоящих из ферромагнитных слоев очень малой номинальной толщины, разделенных относительно толстыми немагнитными прослойками. При этом достаточно тонкие ферромагнитные слои уже не являются сплошными, а разбиваются на отдельные кластеры.

В настоящее время достаточно много работ посвящено изучению подобного рода объектов. В качестве прослоек между ферромагнитными слоями используются как неферромагнитные металлы [4–6], так и изоляторы [7–10]. Обычно в этих работах не проводится детальное исследование возможных магнитных состояний системы. Большинство авторов ограничивается либо небольшим интервалом температур, либо фиксированными значениями толщин ферромагнитных слоев и т.п.

Сравнительно полным является цикл работ, посвященных изучению свойств многослойной структуры металл–изолятор $[\text{Co}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Al}_2\text{O}_3]$ [7–10] с разрывными ферромагнитными слоями. Магнитное состояние такой системы определяется в основном диполь-дипольным взаимодействием между частицами внутри ферромагнитных слоев, а межслойное взаимодействие пренебрежимо мало. В зависимости от номинальной толщины магнитного слоя и температуры в указанных работах обнаружено существование различных магнитных фаз — ферромагнитной (ФМ), суперпарамагнитной (СП) и спинового стекла (СС).

В ряде структур с металлической прослойкой, где важна роль обменного взаимодействия РККИ (Рудерман–Киттель–Касуия–Иосида) между сверхтонкими ферромагнитными слоями (например, Co/Cu [4], Co/Ag [5], Fe/Al [6]), наблюдалось суперпарамагнитное поведение.

Настоящая работа посвящена подробному исследованию эволюции магнитных свойств многослойной системы Fe/Cr с уменьшением толщины слоев железа. В пределе эти слои уже не сплошные, а разбиваются на отдельные островки — ферроманитные кластеры.

Свойства слоистой системы Fe/Cr активно изучались на протяжении последних десятилетий (см. обзоры [11,12]). Именно в этой системе были обнаружены крайне интересные, как с фундаментальной, так и с прикладной точки зрения, явления: гигантское магнитосопротивление, возможность существования, помимо ферромагнитного, антиферромагнитного (АФМ) упорядочения соседних ферромагнитных слоев, длинноволновые и коротковолновые осцилляции межслойного обмена как функции толщины прослойки, неколлинеарное межслойное упорядочение ферромагнитных слоев.

В основном все экспериментальные исследования системы Fe/Cr , в том числе и авторов данной статьи [13–18], проведены на образцах, полученных методом молекулярно-лучевой эпитаксии, с достаточно толстыми однородно намагниченными слоями железа. Суперпарамагнитные и спин-стекольные эффекты в таких образцах пренебрежимо малы — их проявление возможно лишь в случае весьма несовершенных, шерохо-

ватых межслойных границ с сильным взаимным проникновением атомов Fe и Cr . Из работ, посвященных исследованиям структур с такими несовершенными межслойными границами, следует отметить [19–21]. В этом цикле работ авторы изучали структуры Fe/Cr с достаточно толстыми слоями железа $t_{\text{Fe}} \approx 20 \text{ \AA}$, приготовленные методом ионно-лучевого распыления. В исследуемых образцах было обнаружено присутствие спин-стекольной фазы, обусловленной ФМ кластерами железа, формируемыми вблизи границ $\text{Fe}-\text{Cr}$.

В настоящей работе исследуются структуры Fe/Cr со сверхтонкими слоями Fe ($t_{\text{Fe}} < 6 \text{ \AA}$). Уменьшение толщины слоев железа вплоть до сверхтонких, в пределе — разрывных, приводит к более яркому проявлению эффектов суперпарамагнетизма и спинового стекла. Представляется также интересным выяснение влияния знака и величины межслойного обменного взаимодействия на свойства формируемой магнитной структуры.

2. Образцы и экспериментальные методы

Для решения поставленных задач методом молекулярно-лучевой эпитаксии* были выращены две серии образцов — сверхрешеток $[\text{Fe}(t_{\text{Fe}})/\text{Cr}(t_{\text{Cr}})]_n / \text{Cr}(80 \text{ \AA})/\text{MgO}(1\ 0\ 0)$ — с толщинами прослойки хрома 20 и 10 \AA . Выбранные значения толщин хромовой прослойки обеспечивают в слоистых структурах Fe/Cr ферро- (20 \AA) либо антиферромагнитное (10 \AA) межслойное взаимодействие РККИ [11]. В дальнейшем в применении к таким образцам будут соответственно использоваться термины «структуры ферромагнитного (F) или антиферромагнитного (A) типа». Каждая серия состояла из трех многослойных образцов со сверхтонкими слоями железа различной толщины (в пределах 2–6 \AA). В табл.1 приведены структурные формулы и условные обозначения приготовленных образцов.

Таблица 1. Структурные формулы изучаемых образцов

ФМ серия	АФМ серия
F1: $[\text{Fe}(2,5 \text{ \AA})/\text{Cr}(20 \text{ \AA})]_{30}$	A1: $[\text{Fe}(2,1 \text{ \AA})/\text{Cr}(10 \text{ \AA})]_{60}$
F2: $[\text{Fe}(3,5 \text{ \AA})/\text{Cr}(20 \text{ \AA})]_{30}$	A2: $[\text{Fe}(3,1 \text{ \AA})/\text{Cr}(10 \text{ \AA})]_{50}$
F3: $[\text{Fe}(5,5 \text{ \AA})/\text{Cr}(20 \text{ \AA})]_{30}$	A3: $[\text{Fe}(5,2 \text{ \AA})/\text{Cr}(10 \text{ \AA})]_{30}$

Толщины слоев Fe и Cr в процессе роста определялись по времени их напыления, а после приготовления образцов уточнялись с помощью метода микрорентгеноспектрального анализа, который позволял определить абсолютные значения количества напыленного железа и хрома. При этом в случае сверхтонких слоев Fe полученные значения t_{Fe} определяют лишь «номинальную» толщину, поскольку

* Образцы приготовлены в ИФМ УрО РАН. Авторы признательны Л.Н. Ромашеву и М.А. Миляеву за приготовление образцов.

реальный «слой» не является сплошным, а разбит на отдельные кластеры.

Рентгеновская рефлектометрия показывает наличие слоистой структуры у всех выращенных образцов [25]. Оценка шероховатости межслойных границ по форме пиков на угловой зависимости коэффициента рентгеновского отражения дает величину $\sim 3 \text{ \AA}$. Это показывает, что слои железа приготовленных образцов нельзя считать сплошными.

Исследования полученных структур проводились методами магнитометрии и ферромагнитного резонанса. Статические магнитные свойства и низкочастотная магнитная восприимчивость образцов изучались на SQUID-магнитометре (Quantum Design MPMS-XL)*, работающем в диапазоне температур 2–350 К и магнитных полях до 50 кЭ. Магнитное поле прикладывалось в плоскости пленки вдоль оси трудного намагничивания [110].

Спектры ферромагнитного резонанса исследованы с помощью высокочастотного спектрометра, работающего в диапазоне частот 7–37 ГГц и в интервале температур 2–400 К. Внешнее постоянное магнитное поле величиной до 12 кЭ могло прикладываться в произвольном направлении в плоскости пленки.

3. Суперпарамагнитное состояние

Измерения кривых намагничивания $M(H)$ всех исследуемых образцов вплоть до полей 50 кЭ при температурах 4, 30, 77, 150 и 300 К показали, что уменьшение номинальной толщины слоев железа от $t_{\text{Fe}} \approx 5 \text{ \AA}$ до $t_{\text{Fe}} \approx 2 \text{ \AA}$ приводит к сильному изменению магнитных свойств изучаемых структур [22–24].

Поведение систем с $t_{\text{Fe}} \approx 5 \text{ \AA}$ хорошо описывается в рамках представлений об обычных обменно-связанных сверхрешетках. В этом случае общий вид полученных зависимостей $M(H)$ для них в целом соответствует кривым намагничивания обычных сверхрешеток со сплошными слоями железа с ферромагнитным межслойным обменом для прослойки хрома толщиной 20 \AA (F3) и антиферромагнитным обменом для $t_{\text{Cr}} = 10 \text{ \AA}$ (A3) (см. рис. 1) [14].

Исследование структур с более тонкими слоями железа привело к обнаружению в изучаемой системе суперпарамагнитного состояния и позволило определить пороговое значение толщины железных слоев, при котором система переходит от режима обычной обменно-связанной сверхрешетки к суперпарамагнитному поведению.

Как видно на рис. 1, по мере уменьшения номинальной толщины слоев железа температурная зависимость кривых намагничивания становится более ярко выраженной. В области высоких температур вели-

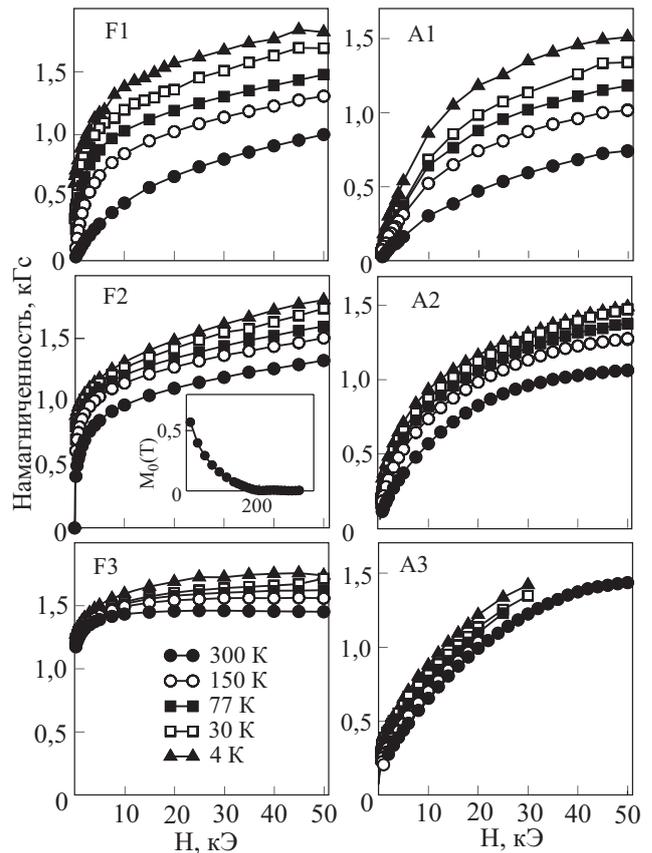


Рис. 1. Кривые намагничивания изучаемых структур при температурах 4, 30, 77, 150 и 300 К. На вставке для образца F2 — температурная зависимость остаточного момента.

чина остаточного момента образцов ФМ типа падает и появляется сильная зависимость $M(H)$, характерная для суперпарамагнетика. С уменьшением номинальной толщины слоя Fe постепенно стирается качественное различие между структурами ФМ и АФМ типов и становится очевидным их суперпарамагнитный характер. Как ФМ, так и АФМ образцы с $t_{\text{Fe}} \approx 2 \text{ \AA}$ (F1 и A1) при $T \gtrsim 100 \text{ К}$ демонстрируют суперпарамагнитное поведение с типичными зависимостями $M(H)$ ланжевеновского вида. Подгонка кривых намагничивания функцией Ланжевена позволяет оценить магнитный момент кластера. Для образца F1 его величина составляет $\mu \sim 300 \mu_B$, где μ_B — магнетон Бора, для образца A1 $\mu \sim 200 \mu_B$. При $T \lesssim 100 \text{ К}$ кривые намагничивания образцов F1 и A1 демонстрируют отклонение от зависимости Ланжевена, а у образца ФМ типа F1 появляется остаточный момент.

Таким образом, СП фаза исследуемых образцов реализуется лишь при достаточно высоких температурах. Причем, по-видимому, температура перехо-

* Измерения проводились на магнитометрах в ИФМ УрО РАН и ИОФ РАН. Благодарим А.В. Королева, А.А. Мухина и В.Ю. Иванова за содействие в проведении экспериментов.

да к суперпарамагнитному режиму повышается с увеличением номинальной толщины слоев железа. Так, для образца ФМ типа F2 ($t_{Fe} = 3,5 \text{ \AA}$) остаточный момент исчезает при $T \sim 200 \text{ K}$ (см. вставку на рис. 1, F2), а для образца F3 остаточный момент слабо меняется, оставаясь конечным во всем исследованном интервале температур.

Трансформация магнитных свойств к суперпарамагнитному режиму с изменением толщины слоев железа прослеживается как при исследовании статических кривых намагничивания, так и при изучении спектров ферромагнитного резонанса (соответствующие экспериментальные данные опубликованы в работах [22,23,25]). При температурах порядка комнатной спектры ФМР образцов с $t_{Fe} \approx 5 \text{ \AA}$ (F3 и A3) хорошо описываются в рамках представлений об обычных обменно-связанных сверхрешетках (см. [14]), а образцы с $t_{Fe} \approx 2 \text{ \AA}$ (F1 и A1) имеют линейную зависимость частоты ФМР от поля, что характерно для суперпарамагнитного поведения. Изучение образца АФМ типа А2 с помощью ФМР показывает наличие в нем упорядоченной фазы вплоть до $T \approx 400 \text{ K}$. При более высоких температурах происходит переход к суперпарамагнитному поведению, проявляющийся в исчезновении анизотропии положения резонансной линии [22,23].

4. Спин-стекольное поведение системы при низких температурах

Детальное исследование поведения изучаемой системы сверхрешеток при низких температурах привело к обнаружению в ней ряда новых свойств, свидетельствующих о реализации спин-стекольного состояния.

Статические магнитные свойства

Исследования показали, что в области сравнительно низких температур и малых полей магнитные свойства образцов необратимы, и состояние системы зависит от ее магнитной предыстории. Так, температурные зависимости намагниченности, полученные для образцов, охлажденных в магнитном поле, $M_{FC}(T)$, и в его отсутствие, $M_{ZFC}(T)$, в области низких температур демонстрируют различное поведение (см. рис. 2). При увеличении температуры измеренная в некотором малом поле H величина $M_{FC}(T)$ монотонно убывает, а $M_{ZFC}(T)$ при некоторой температуре проходит через максимум [24,25].

Максимум кривой $M_{ZFC}(T)$ определяет характерную температуру $T_m(H)$, ниже которой свойства системы существенно необратимы. При фиксированном H зависимость этой температуры от номинальной толщины слоя железа различна для образцов ФМ и АФМ серий. Для образцов ФМ типа значение T_m растет с увеличением номинальной толщины

железа, а для образцов АФМ типа, наоборот, падает (рис. 2).

Обнаруженная необратимость свойств системы при низких температурах в принципе может объясняться различными причинами. В случае кластерного устройства слоев железа эффект может быть связан с блокировкой отдельных ферромагнитных частиц из-за их внутренней анизотропии. При наличии межчастичных взаимодействий могут также возникать коллективные состояния типа спинового стекла. Наконец, для достаточно толстых слоев железа необратимость может быть обусловлена обычной доменной структурой ФМ пленок. Чтобы определить, какой механизм реализуется в конкретном случае, был проведен ряд дополнительных экспериментов.

Изучение петель гистерезиса, снятых для исследуемых образцов при температурах более низких, чем точки возникновения необратимости на кривых $M(T)$, привело к обнаружению их необычной формы. Характерная особенность их состоит в том, что начальная кривая намагничивания, измеренная после охлаждения образца в отсутствие поля, лежит ниже петли гистерезиса, полученной после приложения к образцу сильного магнитного поля (рис. 3). Подобная аномалия в той или иной степени наблюдается при низких температурах для всех исследуемых образцов, за исключением F3. При увеличении температуры эта аномалия исчезает. Величина поля, при котором кривая начального намагничивания выходит на петлю гистерезиса, могла достигать $\sim 5 \text{ кЭ}$. Это на порядок больше величины кристаллографической анизотропии объемного железа, а также анизотропии, наблюдающейся для «обычных» сверхрешеток Fe/Cr с «толстыми» ферромагнитными слоями. Поэтому трудно объяснить данное свойство петель гистерезиса эффектами анизотропного характера, такими как ФМ домены или блокировка суперпарамагнитных частиц.

Мы предполагаем, что наблюдаемое поведение ука-

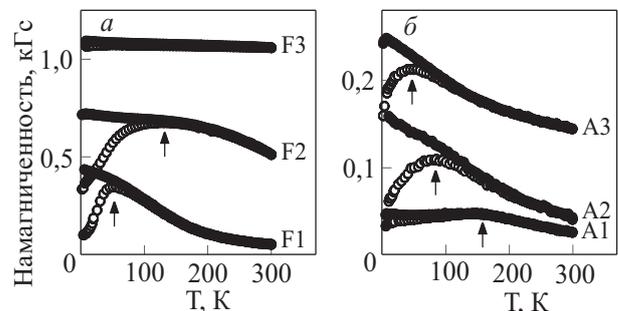


Рис. 2. Температурные зависимости намагниченности M_{FC} и M_{ZFC} исследуемых структур ФМ (а) и АФМ (б) типов, измеренные в поле 500 Э после процедуры охлаждения образца в отсутствие поля (○) и в поле (●). Стрелками указаны положения максимумов на кривых $M_{ZFC}(T)$.

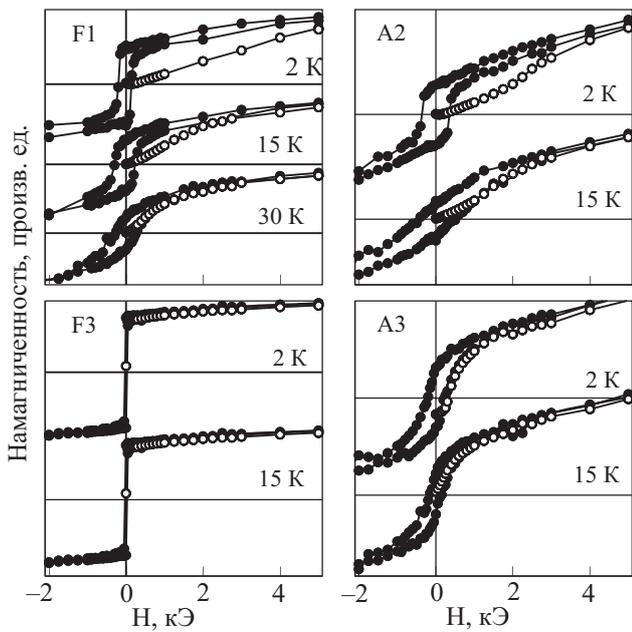


Рис. 3. Петли гистерезиса (●) и кривые начального намагничивания (○) для образцов F1, A2, F3 и A3 при различных температурах.

зывает на реализацию в системе при низких температурах коллективного состояния типа спинового стекла. Такое состояние характеризуется множественностью локальных минимумов энергии с различными значениями полной намагниченности. Для перевода системы из состояния с малым магнитным моментом в состояние с большим магнитным моментом необходимы существенно большие поля, чем для вращения этого магнитного момента как целого.

Описанное необычное поведение кривой начального намагничивания наблюдалось ранее в системах взаимодействующих магнитных наночастиц (например, Ni [26], FeNi [27], Fe₂O₃ [28]). Также сообщалось о наблюдении подобной аномалии в неупорядоченном сплаве AuFe [29] и в более сложных системах, характеризующихся спинстекольным поведением [30].

Комплексная магнитная восприимчивость

Магнитная восприимчивость изучалась в нулевом постоянном и малом переменном поле на частотах 1–10³ Гц. На рис. 4 приведены температурные зависимости действительной и мнимой частей восприимчивости для пяти исследуемых образцов, полученные при охлаждении от 350 К в отсутствие статического поля в переменном поле с амплитудой 2,5 Э и частотой 10 Гц.

Для образцов F1, F2, A2 и A3 температурные зависимости действительной части комплексной восприимчивости $\chi'(T)$ имеют максимумы. Структуры ФМ типа F1 и F2, кроме того, демонстрируют наличие максимумов мнимой компоненты $\chi''(T)$, сдвинутых по

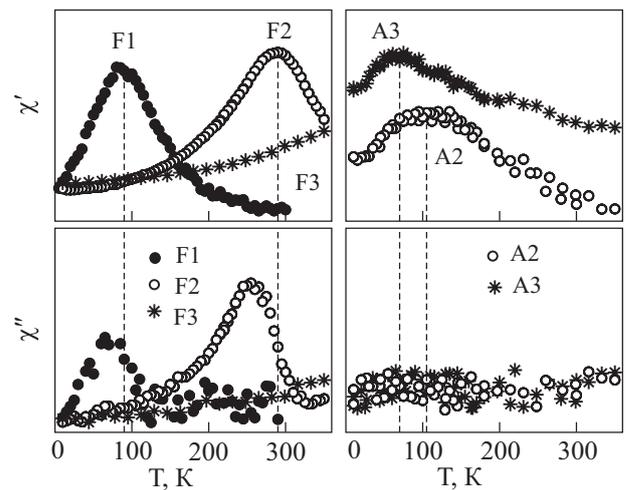


Рис. 4. Температурные зависимости действительной и мнимой частей восприимчивости для образцов ФМ и АФМ типов на частоте 10 Гц. Амплитуда переменного поля 2,5 Э.

сравнению с пиками действительной составляющей в сторону меньших температур.

Наблюдаемые пики восприимчивости типичны для систем, у которых время магнитной релаксации τ существенно возрастает ниже определенной температуры T_f , превышая характерное время внешнего воздействия. Температура максимума действительной части восприимчивости T_f и частота переменного поля f связаны соотношением $\tau^{-1}(T_f) = f$. Изучая зависимость $f(T_f)$, можно делать выводы о механизмах магнитной релаксации в системе.

Оказалось, что для исследуемых образцов температура максимума действительной части восприимчивости T_f достаточно слабо зависит от частоты переменного поля f . Для структур ФМ типа сдвиг T_f составляет менее 10 К при изменении частоты f на 3 порядка (рис. 5). Для АФМ образцов пики $\chi'(T)$ шире и менее интенсивны, чем для структур ФМ типа, и частотной зависимости T_f в пределах погрешности измерений наблюдать не удается.

Такая слабая зависимость T_f от частоты не может быть объяснена в предположении релаксации системы невзаимодействующих магнитных частиц, описываемой классическим активационным законом Аррениуса $f(T_f) \sim \tau_0^{-1} \exp(-\Delta E / k_B T)$, где ΔE — энергия активации, τ_0 — постоянная времени. В этом случае сравнение с экспериментальными данными приводит к нереально малым значениям константы $\tau_0 \lesssim 10^{-50}$ с.

С другой стороны, наблюдаемое поведение объяснимо, если считать, что время релаксации системы расходуется при конечной температуре фазового перехода в состояние спинового стекла. При этом для образцов ФМ типа зависимость $f(T_f)$ может быть качественно описана степенным критическим законом [31]: $f(T_f) \sim$

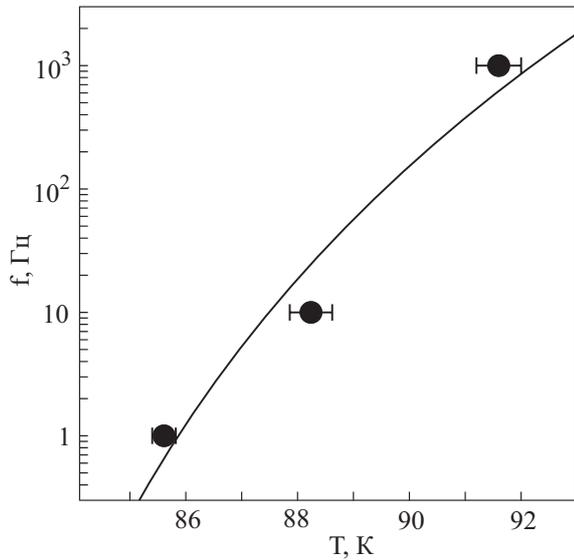


Рис. 5. Частота переменного поля f как функция температуры максимума T_f действительной части восприимчивости для образца F1. Точки — эксперимент, линия — теоретическая зависимость, описывающая критическое поведение вблизи точки фазового перехода (см. текст).

$\sim \tau_0^{-1} (T_f / T_g - 1)^{z\nu}$ с «разумными» значениями постоянной времени $\tau_0 \sim 10^{-10}$ с и критического показателя $z\nu \sim 10$ [8,31] (сплошная линия на рис. 5). Величина T_g имеет смысл температуры перехода в состояние спинового стекла. В табл. 2 приведены значения T_g для каждого образца. Для структур АФМ типа (А2 и А3) в качестве оценки T_g берется температура T_f , которая не зависит от частоты в пределах погрешности эксперимента.

Таблица 2. Величина T_g изучаемых образцов

ФМ серия	T_g , К	АФМ серия	T_g , К
F1	≈ 80	A1	≈ 150
F2	≈ 280	A2	≈ 100
F3	—	A3	≈ 70

Температура перехода T_g , определенная указанным выше образом, находится в качественном согласии с $T_m(H)$ — температурой максимума кривой $M_{ZFC}(T)$ в малых полях H (ср. рис. 2, а более подробно см. [24]; температура T_g для образца А1 в табл. 2 определена по величине $T_m(H)$ при $H \rightarrow 0$). В случае структур ФМ типа T_g растет с увеличением номинальной толщины слоев железа t_{Fe} , а для АФМ структур, наоборот, падает.

Ферромагнитный резонанс

Необратимость магнитных свойств системы в области низких температур проявляется также при изучении спектров ферромагнитного резонанса.

Рисунок 6,а иллюстрирует зависимость вида кривой микроволнового поглощения на частоте $f = 7,6$ ГГц от магнитной предыстории для образца F2. Эксперимент проводился в следующем порядке: в отсутствие поля образец охлаждался от комнатной температуры до $T = 4$ К. Затем вводилось магнитное поле малой величины $H_i = H_1$. При уменьшении приложенного поля до

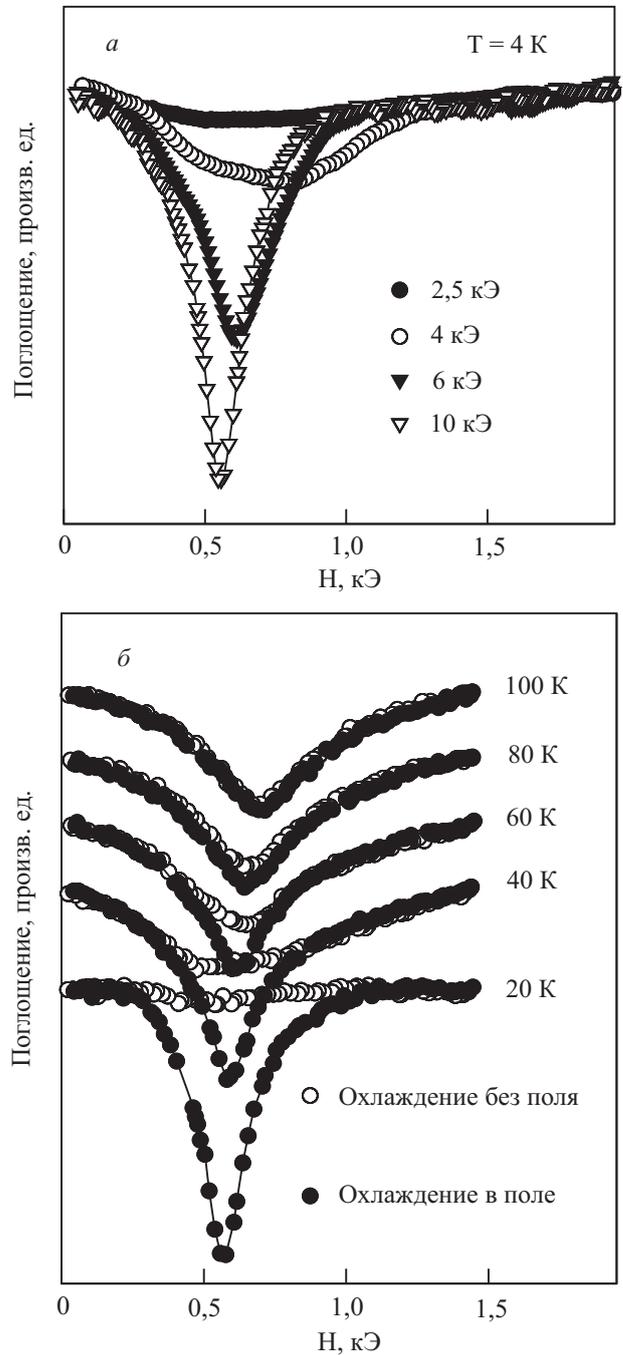


Рис. 6. Наблюдение необратимых магнитных процессов с помощью ФМР (образец F2, $f = 7,6$ ГГц): кривые поглощения, записанные после охлаждения образца в нулевом поле до 4 К и последующего приложения различных величин поля (а); кривые поглощения, записанные после охлаждения образца в поле и без поля (б).

нуля проводилась запись кривой СВЧ поглощения. Эта процедура повторялась с последовательно увеличивающимися значениями поля H_i : $H_{i+1} > H_i$. Видно, что при небольших значениях H_i резонансное поглощение практически отсутствует (рис. 6,а, $H_i = 2,5$ кЭ). По мере увеличения H_i сначала появляется малоинтенсивная широкая линия, которая затем становится все уже и интенсивней. Насыщение линии не удается наблюдать вплоть до максимально доступного поля $H_i \approx 10$ кЭ.

Наблюдаемое поведение может быть объяснено в предположении реализации в исследуемых структурах состояния типа спинового стекла. В этом случае при охлаждении в нулевом поле система попадает в одно из метастабильных состояний, у которого отсутствует макроскопическая намагниченность и имеется широкий спектр собственных частот. Приложением магнитных полей ~ 10 кЭ система переводится, последовательно преодолевая ряд потенциальных барьеров, в состояние с наличием макроскопического момента. В таком состоянии появляется выделенная собственная частота, соответствующая колебанию системы как целого — акустическая мода.

Используя метод ФМР, можно определить температуру, ниже которой в образце возникает подобное спин-стекольное состояние. С этой целью сравниваются спектры СВЧ поглощения, измеренные при разных температурах для образца, приготовленного охлаждением в поле и в его отсутствие.

На рис. 6,б представлены результаты таких измерений для образца F2. Показаны серии кривых поглощения, записанные при разных температурах, для двух случаев. В первом случае изначально образец охлаждался от комнатной температуры до $T = 4$ К в отсутствие поля, а во втором случае охлаждение образца производилось в магнитном поле $H \sim 10$ кЭ. После этого поле полностью выводилось. В обоих случаях измерения осуществлялись в следующем порядке. Устанавливалась определенная температура образца (выше 4 К), вводилось поле $H = 1,5$ кЭ и производилась запись кривой поглощения при уменьшении поля до нуля. Далее процедура регистрации кривой поглощения повторялась при последовательном увеличении температуры образца. Как видно на рисунке, в области низких температур кривые, полученные для разных случаев, существенно отличаются. Образец, приготовленный охлаждением в поле, демонстрирует резонансное поглощение (●). Для образца, охлажденного в отсутствие поля, никаких особенностей поглощения не наблюдается (○). При увеличении температуры разница между двумя кривыми постепенно стирается, и при $T \gtrsim 80$ К они начинают совпадать. Полученная температура соответствует точке возникновения необратимости статической намагниченности в поле 1,5 кЭ [25].

Таким образом, совокупность результатов, полученных из большого набора экспериментов, описанных в этом разделе, свидетельствует о реализации в системе в области низких температур состояния кластерного спинового стекла.

5. Фазовая диаграмма магнитных состояний

Проведенные исследования показали, что в зависимости от толщины слоев железа и температуры в изучаемой системе реализуются различные магнитные фазы: суперпарамагнитная, магнитоупорядоченная и спиновое стекло.

На основании полученных результатов можно сделать определенные выводы о качественном характере магнитных фазовых диаграмм структур ФМ и АФМ типов в координатах температура — толщина слоя железа (рис. 7) [24]. Символы (●) на рисунке соответствуют экспериментальным значениям температуры перехода в фазу спинового стекла T_g для исследованных образцов. (▲) — температура парамагнитного перехода (для образца A2). Линии на графиках проведены для наглядности. Они на качественном уровне разграничивают области фазовой диаграммы, в которых реализуются различные магнитные состояния.

Как видно на рис. 7, в исследованном диапазоне толщин слоев Fe фазовые диаграммы для образцов ФМ и АФМ типов имеют разный вид. Так, линия перехода в спин-стекольное состояние $T_g(t)$ для образцов ФМ типа имеет «возрастающий» характер (при увеличении номинальной толщины слоев Fe), а для образцов АФМ типа — «убывающий».

Выше температуры T_g образцы F1 и F2 проявляют суперпарамагнитные свойства, что наиболее ярко выражается в исчезновении остаточного момента (см. рис. 1 и [25]). Образец F3 ($t_{Fe} = 5,5$ Å) не демонстрирует каких-либо существенных особенностей суперпарамагнитного либо спин-стекольного поведения, за исключением слабой зависимости $M(H)$ и малого

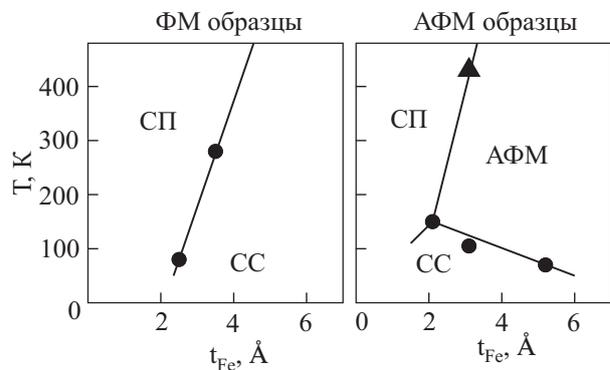


Рис. 7. Качественные диаграммы наблюдаемых магнитных состояний в исследуемых структурах Fe/Cr ФМ и АФМ серий в координатах температура—номинальная толщина железа.

расщепления кривых $M_{FC}(T) - M_{ZFC}(T)$. По-видимому, основной объем этого образца находится в магнитоупорядоченном состоянии.

Образцы АФМ типа, в отличие от ФМ, демонстрируют наличие упорядоченной фазы (по данным ФМР [22]) выше T_g уже при толщинах $t_{Fe} \approx 3 \text{ \AA}$. При этом, по данным ФМР, образец А2 при температуре $\approx 400 \text{ K}$ переходит в (супер)парамагнитное состояние ((▲) на рис. 7), а образец А3 ведет себя как магнитоупорядоченная сверхрешетка вплоть до высоких температур [25].

Возникновение различных фаз в изучаемых структурах связано, по-видимому, с конкуренцией среднего ФМ взаимодействия внутри слоев Fe, среднего межслойного обмена РККИ и случайных межчастичных взаимодействий, имеющих магнитодипольную либо РККИ природу. Еще одним механизмом, определяющим возникновение состояния типа СС в исследуемых образцах, возможно, является взаимодействие ФМ частиц железа с магнитной структурой хрома. Как известно, в тонких слоях Cr, граничащих с относительно толстыми слоями Fe, формируется особое магнитное состояние волны спиновой плотности [11]. В обычных структурах типа Fe/Cr наличие этого состояния приводит к появлению значительного биквадратичного вклада в энергию взаимодействия слоев Fe и к неколлинеарному магнитному упорядочению этих слоев [16,32,33]. В случае сверхтонких слоев Fe наличие такой структуры Cr, если она осуществляется, могло бы привести к формированию неупорядоченного магнитного состояния типа СС.

Наблюдаемое различие фазовых диаграмм для двух серий образцов наиболее вероятно связано с различием в величине межслойного взаимодействия через прослойку хрома. Для образцов ФМ типа с $t_{Fe} \lesssim 3 \text{ \AA}$ межслойный обмен относительно мал и свойства системы определяются в основном взаимодействиями случайного характера внутри магнитного слоя. В этом случае при высоких температурах система является суперпарамагнетиком, а при охлаждении переходит не в упорядоченное ФМ состояние, а в состояние спинового стекла. По мере увеличения номинальной толщины напыленного железа величина взаимодействий внутри магнитного слоя растет, что приводит к увеличению температуры спин-стекольного перехода. По-видимому, лишь при $t_{Fe} \approx 5 \text{ \AA}$ ФМ взаимодействие в слое начинает преобладать, и пленка переходит в ФМ состояние.

Из-за меньшей толщины прослойки хрома АФМ образцы обладают существенно большим межслойным обменом в сравнении со структурами ФМ типа. По этой причине каждый из магнитных слоев испытывает существенное воздействие среднего поля со стороны соседних слоев. Поэтому образцы АФМ серии, в отличие от структур ФМ типа, уже при $t_{Cr} = 3 \text{ \AA}$ демонст-

рируют переход из суперпарамагнитной в фазу с АФМ упорядочением соседних слоев Fe. При более низких температурах наблюдается «возвратная» фаза спинового стекла. С увеличением t_{Fe} эффективное среднее поле внутри слоев растет, а относительный вклад случайных взаимодействий ослабевает. Соответственно, температура перехода из суперпарамагнитной в упорядоченную фазу растет, а температура перехода в фазу спинового стекла понижается.

Как уже отмечалось, состояние спинового стекла изучалось в цикле работ [19–21] для многослойных пленок $[\text{Fe}(20 \text{ \AA})/\text{Cr}(t_{Cr})]$, выращенных методом ионного распыления. Причины возникновения спин-стекольного состояния в таких образцах оказываются, однако, существенно иными, чем в эпитаксиальных монокристаллических сверхрешетках. Метод ионного распыления позволяет получать лишь поликристаллические структуры с достаточно шероховатыми границами раздела слоев. Заметная часть атомов Fe в таких образцах находится в ферромагнитных кластерах, располагающихся в приграничных областях между слоями железа и хрома. Наблюдавшиеся в работах [19–21] спин-стекольные явления, как указывают авторы, в первую очередь были связаны с такими разрозненными кластерами железа, структура и концентрация которых определяется технологией напыления образцов и с трудом может быть проконтролирована.

Нами исследованы образцы, полученные методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Эти образцы обладают гораздо более высоким качеством межслойных границ. В этом случае вклад ферромагнитных кластеров в общие магнитные свойства системы становится заметен лишь при номинальной толщине слоев Fe порядка нескольких атомов, когда на кластеры разбивается весь слой Fe.

Работа поддержана грантами РФФИ 07-02-01252, 09-02-12341 и НШ-6122.2008.2.

Авторы рады приурочить данную работу к юбилею академика Виктора Григорьевича Барьяхтара, внесшего выдающийся вклад в физику магнитных явлений.

1. И.Я. Коренблит, Е.Ф. Шендер, *УФН* **157**, 267 (1989).
2. K. Binder and A.P. Young, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 801 (1986).
3. X. Batlle and A. Labarta, *J. Phys.* **D35**, R15 (2002).
4. P. Vavassori, F. Spizzo, E. Angeli, D. Bisero, and F. Ronconi, *J. Magn. Magn. Mater.* **262**, 120 (2003).
5. E.A.M. van Alphen and W.J.M. de Jonge, *Phys. Rev.* **B51**, 8182 (1995).
6. M. Carbuicchio, C. Grazzi, M. Rateo, G. Ruggiero, M. Solzi, and G. Turilli, *J. Magn. Magn. Mater.* **215–216**, 563 (2000).
7. W. Kleemann, O. Petracic, Ch. Binek, G.N. Kakazei, Yu.G. Pogorelov, J.B. Sousa, S. Cardoso, and P.P. Freitas, *Phys. Rev.* **B63**, 134423 (2001).

8. O. Petravic, X. Chen, S. Bedanta, W. Kleemann, S. Sahoo, S. Cardoso, and P.P. Freitas, *J. Magn. Magn. Mater.* **300**, 192 (2006).
9. G.N. Kakazei, Yu.G. Pogorelov, A.M.L. Lopes, J.B. Sousa, S. Cardoso, P.P. Freitas, M.M. Pereira de Azevedo, and E. Snoeck, *J. App. Phys.* **90**, 4044 (2001).
10. G.N. Kakazei, Yu.G. Pogorelov, J.A.M. Santos, J.B. Sousa, P.P. Freitas, S. Cardoso, N.A. Lesnik, and P.E. Wigen, *J. Magn. Magn. Mater.* **266**, 57 (2003).
11. D.T. Pierce, J. Unguris, R.J. Celotta, and M.D. Stiles, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 290 (1999).
12. M.D. Stiles, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 322 (1999).
13. А.Б. Дровосеков, Н.М. Крейнес, Д.И. Холин, В.Ф. Мещеряков, М.А. Миляев, Л.Н. Ромашев, В.В. Устинов, *Письма в ЖЭТФ* **67**, 690 (1998).
14. А.Б. Дровосеков, О.В. Жотикова, Н.М. Крейнес, В.Ф. Мещеряков, М.А. Миляев, Л.Н. Ромашев, В.В. Устинов, Д.И. Холин, *ЖЭТФ* **116**, 1817 (1999).
15. A.B. Drovosekov, D.I. Kholin, N.M. Kreines, O.V. Zhotikova, and S.O. Demokritov, *J. Magn. Magn. Mater.* **226–230**, 1779 (2001).
16. С.О. Демокритов, А.Б. Дровосеков, Н.М. Крейнес, Х. Нембах, М. Рикарт, Д.И. Холин, *ЖЭТФ* **122**, 1233 (2002).
17. Н.М. Крейнес, Д.И. Холин, С.О. Демокритов, М. Рикарт, *Письма в ЖЭТФ* **78**, 1121 (2003).
18. S.O. Demokritov, A.B. Drovosekov, D.I. Kholin, N.M. Kreines, H. Nembach, and M. Rickart, *J. Magn. Magn. Mater.* **272–276**, E963 (2004).
19. N. Theodoropoulou, A.F. Hebard, M. Gabay, A.K. Majumdar, C. Pace, J. Lannon, and D. Temple, *J. Magn. Magn. Mater.* **263**, 32 (2003).
20. R.S. Patel, A.K. Majumdar, A.K. Nigam et al., *arXiv:cond-mat/0504275 v1* (2005).
21. R.S. Patel, A.K. Majumdar, and A.K. Nigam, *J. Magn. Magn. Mater.* **309**, 256 (2007).
22. A.B. Drovosekov, N.M. Kreines, M.A. Milyaev, L.N. Romashev, and V.V. Ustinov, *J. Magn. Magn. Mater.* **290–291**, 157 (2005).
23. A.B. Drovosekov, N.M. Kreines, M.A. Milyaev, L.N. Romashev, and V.V. Ustinov, *Phys. Status Solidi* **3**, 109 (2006).
24. А.Б. Дровосеков, Н.М. Крейнес, Д.И. Холин, А.В. Королев, М.А. Миляев, Л.Н. Ромашев, В.В. Устинов, *Письма в ЖЭТФ* **88**, 126 (2008).
25. А.Б. Дровосеков, *дисс. канд. физ.-мат. наук*. Москва, (2008).
26. P. Zhang, F. Zuo, F.K. Urban III, A. Khabari, P. Griffiths, and A. Hosseini-Tehrani, *J. Magn. Magn. Mater.* **225**, 337 (2001).
27. R.D. Zysler, C.A. Ramos, E. De Biasi, H. Romero, A. Ortega, and D. Fiorani, *J. Magn. Magn. Mater.* **221**, 37 (2000).
28. R.D. Zysler, D. Fiorani, and A.M. Testa, *J. Magn. Magn. Mater.* **224**, 5 (2001).
29. S. Senoussi, *J. Phys.* **45**, 315 (1984).
30. C.A. Cardoso, F.M. Araujo-Moreira, V.P.S. Awana, E. Takayama-Muromachi, O.F. de Lima, H. Yamauchi, and M. Karppinen, *Phys. Rev.* **B67**, 020407 (2003).
31. A.T. Ogielski, *Phys. Rev.* **B32**, 7384 (1985).
32. Д.И. Холин, Н.М. Крейнес, *Известия РАН. Серия физ.* **71**, 1585 (2007).
33. В.Н. Меньшов, В.В. Тугушев, *ЖЭТФ* **125**, 136 (2004).

Magnetic states of Fe/Cr multilayer structures with ultrathin iron layers

A.B. Drovosekov, N.M. Kreines, and D.I. Kholin

The evolution of magnetic properties was studied in Fe/Cr superlattices with nominal iron layer thickness diminishing down to atomic values, where these layers were no longer continuous. The investigations were performed using multilayer structures with Fe thickness of 2–6 Å for chromium spacers 10 Å and 20 Å thick. The samples were prepared by the molecular beam epitaxy technique. The measurements of static magnetization, complex magnetic susceptibility and FMR spectra were carried out. It is found that there may occur different magnetic phases in the system depending on nominal Fe layer thickness and temperature: superparamagnetic phase, the magnetically ordered one, and non-ergodic state with sample magnetic history-dependent magnetization. The observed non-ergodic phase is shown to exhibit spin glass properties. A qualitative phase diagram of the system magnetic states is constructed.

PACS: 75.50.Lk Spin glasses and other random magnets;
 75.50.Tt Fine-particle systems; nanocrystalline materials;
 75.70.Cu Magnetic properties of interfaces (multilayers, superlattices, heterostructures).

Keywords: multilayer structures, superparamagnetism, spin glass.