

NiCu 多层膜的电子结构及其磁性

沈汉鑫, 黄美纯, 沈耀文, 朱梓忠

(厦门大学物理学系, 福建 厦门 361005)

摘要: 用自旋极化的 LMT O 超元胞方法计算了 NiCu 多层膜的电子结构, 通过对 NiCu 多层膜的每一层的态密度的分析, 表明 Ni 的磁性随层数变化而明显变化.

关键词: 磁性多层膜; 电子能带结构; 磁性质; 电性质

中图分类号: O 484.4

文献标识码: A

当今, 新型薄膜材料对当代高新技术起着重要作用, 是国际上科学技术研究的热门学科之一. 信息存储已被普遍应用, 存储密度在日新月异的快速提高, 它在很大程度上依赖于磁性薄膜的研究成果. 因此, 磁性多层膜的研究具有极重要的意义^[1,2]. 对于 NiCu 系统, 一方面已经知道它可以在很大组分的大块合金上构成一个简单的固溶体, 另一方面有许多关于 NiCu 磁性多层膜的实验报道^[1], 如对于 NiCu 组成的磁性多层膜的磁各向异性, 磁矩和超精细的磁场的测量^[2]. 理论上计算也有许多报道^[3-5], 如 Santos^[5] 等人的计算, 采用了 LMT O-ASA 方法, 计算了两层的 NiCu 多层膜, 结论是没有磁性, 磁矩为零. 本文采用自旋极化的 LMT O 方法, 用 FM/NM/FM 三明治式的 20 层的超元胞进行模拟计算, 结果与最近的实验值^[1,2] 相吻合, 磁矩随层厚度的变化而有明显的变化. 以下是我们的计算情况及分析, 第二节是计算方法及结构模型, 第三节讨论我们得到的结果, 最后是小结.

1 计算方法及结构模型

磁性多层膜界面的磁性与样品的结构有很大的关系, 在选择计算的超元胞模型时, 我们考虑到 Ni 和 Cu 的原子半径相近, 分别为 $R_{\text{Ni}} = 1.246 \text{ au}$, $R_{\text{Cu}} = 1.278 \text{ au}$, 而且都是 fcc 结构, 组成晶体不会产生大的失配位错, 对结构参数的选择, 用能量最小值原理决定. 对于用 *ab initio* 各种方法, 一般通过自洽计算, 选择总能最小时所对应的结构参数. 但对于超元胞来说, 相对就复杂多了, 如需要较高级的计算机、结构设定以及计算参数怎么合理设定等. 最近对于这种三明治式的超晶格, 常选用如下二种方法, 1) 固定原子体积 (CAV) 方法; 2) 是扩展原子体积 (EAV) 方法, 见 [6, 7]. 根据 Stoeffler D. and Ounadjela K. 等人^[6,7] 的计算, 结果表明用固定原

收稿日期: 2000-06-12

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(69896260)

作者简介: 沈汉鑫(1966-) 男, 讲师, 龙岩高等师范专科学校访问学者.

子体积(CAV)的方法来决定结构参数比较合理,相对总能较低.因此本文采用固定原子体积的方法(CAV).

对 NiCu 多层膜的电磁结构采用如图 1 所示 20 层体心结构的超元胞来计算,并讨论它们的电子结构和磁性.图中从上到下共 20 层,各原子保持原子半径不变,按层次不同分类,如不等价的 Ni 和 Cu,这样对图 1 超元胞原子分别标示为最上层原子是 Ni₁,第二层的原子为 Ni₂,与此类推,到 NiCu 的接触层的原子为 Ni 的 Ni₇ 和 Cu 的 Cu₁,接下去是 Cu₂, Cu₃, Cu₄.再下去与上面对称重复,即 Cu₃, Cu₂, ... Ni₃, Ni₂, Ni₁ 原子.不同层结构常数不同,按 CAV 方法,用不同的 C(相同的原子球)来定出原子的位置. C 方向的 d₁, d₂, d₃ 分别为: d₁ 为 Ni 层间距, d₂ 为 Ni 层与 Cu 层间距, d₃ 为 Cu 间距.它们的值由下式^[7]确定.

$$d(p_i - p_{i+1}) = \frac{(4\pi/3) \{ [R_{ws}(i)^3 + R_{ws}(i+1)^3] / 2 \}}{a_{Ni}^2} \quad (1)$$

式中 $R_{ws}(i)$ 为第 i 类 Wigner-Seitz 球原子半径, p_i 为第 i 类原子层. a_{Ni} 为 Ni 的结构常数. 这样

$$d1 = d (Ni - Ni) \quad (2)$$

$$d3 = d (Cu - Cu) = \frac{(4\pi/3) R_{ws}(Cu)^3}{a_{Ni}^2} = \frac{C_{Cu}}{2} \quad (3)$$

$$d2 = d (Cu - Ni) = \frac{a_{Ni} + 2d (Cu - Cu)}{4} \quad (4)$$

使用自旋极化的 LMTO 方法^[8],自洽计算这 20 层的 NiCu 多层膜,所有的芯态和价态都是自洽计算即采用不冻芯近似的自旋极化 LMTO. 采用 Von Barth-Hedin 公式^[8]表述自由电子气的交换-关联势. 为了节省计算机时,在计算的初步迭代中,用 Chadi, Cohen^[10]的特殊点方法,取不可约布里渊区(IBZ)中的 6 个特殊点迭代到自洽.然后再用得到的自洽电荷密度计算 IBZ 中的 200 个均匀网格 k 点上的能量本征值和态密度.最后两次迭代的总能量差小于 0.1 mRy,用四面体方法得到态密度 DOS 图.

Ni 的外层电子构形是: $3d^8 4s^2$, 所以基函数的选择为 $4s, 4p, 3d$. 有些文献考虑 f 电子,但我们认为 f 电子贡献非常小,这里就不考虑了. 自旋磁矩 μ 由自旋密度 $n_{\uparrow} - n_{\downarrow}$ 决定,

$$n_{\uparrow} - n_{\downarrow} = (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) \quad (5)$$

式中 n_{\uparrow} 为 d 电子自旋朝上的电子数, n_{\downarrow} 为 d 电子自旋朝下的电子数. 磁矩 μ 的单位是 μ_B .

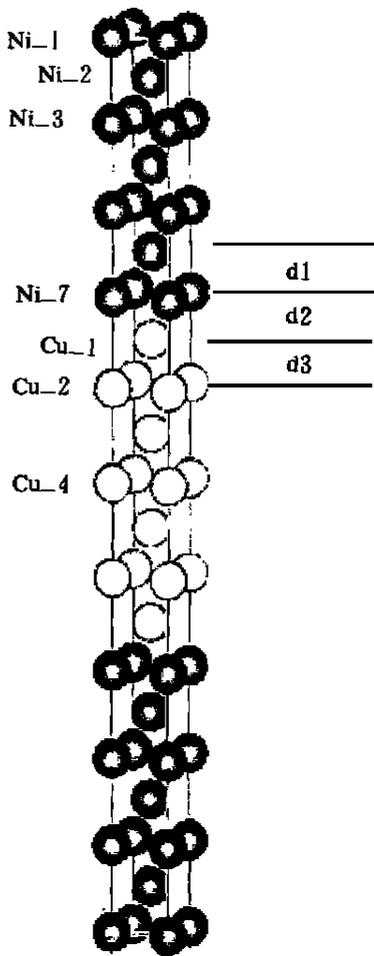


图 1 NiCu 20 层体心结构超元胞

Fig. 1 The structure of NiCu multilayers

2 结果与讨论

表1是NiCu 20层平衡相的NiCu的d电子的电子分布参数,计算出的Ni的磁矩与实验值($\mu = 0.56 \mu_B$)和理论值($\mu = 0.59 \mu_B$)相比略小了,这归结为方法本身的误差,我们又做了全部是Ni的相同结构的8层超元胞,纯Ni的磁矩为 $\mu = 0.236 \mu_B$ 。从表中可见,与Cu相接触Ni_7层的磁矩几乎为零,而较远离Cu的Ni_1层磁矩则为 $0.237 \mu_B$,可见随着Ni层厚的增加,Ni的磁矩显著增大,磁性增强。

表1 NiCu多层膜中各层d电子的电子分布参数

Tab.1 The parameter of NiCu

层数	Ni_1	Ni_2	Ni_3	Ni_4	Ni_5	Ni_6	Ni_7	Cu_1	Cu_2	Cu_3	Cu_4
N	4.459	4.459	4.462	4.445	4.420	4.367	4.358	4.781	4.782	4.784	4.785
N	4.232	4.233	4.229	4.246	4.274	4.331	4.355	4.790	4.786	4.787	4.787
n_σ	0.237	0.226	0.233	0.199	0.146	0.036	0.003	-0.009	-0.004	-0.003	-0.002

表中Ni_x为Ni不同类的原子,Cu_x为Cu不同类的原子, n_σ 为自旋密度

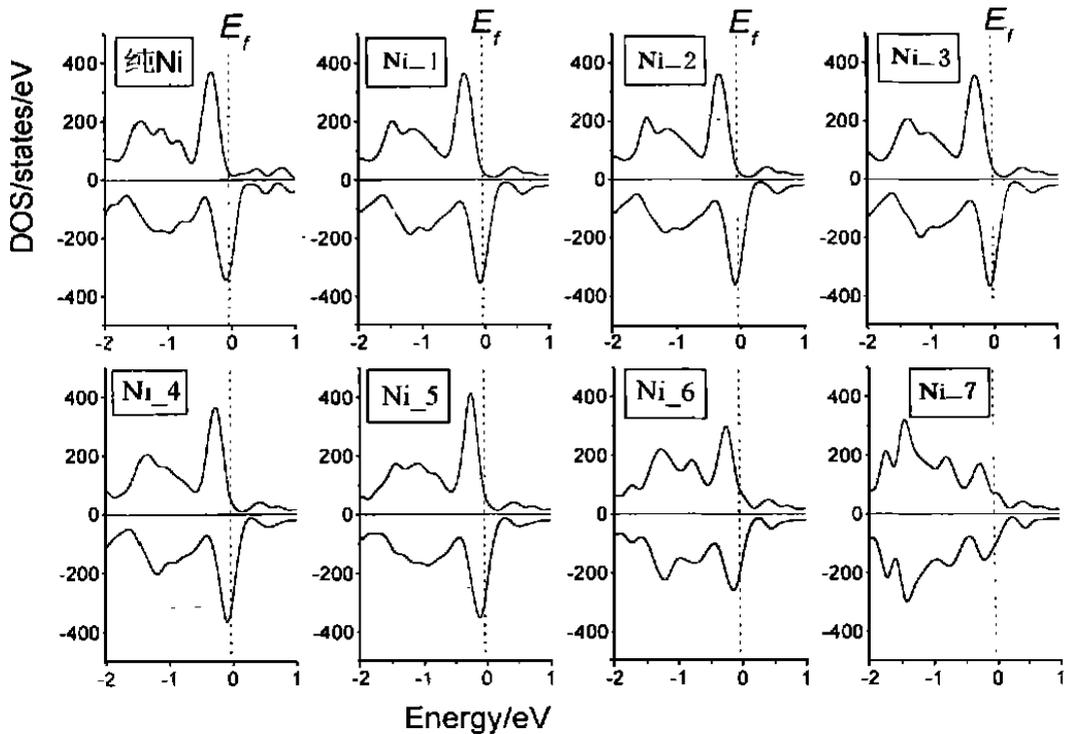


图2 NiCu中Ni的d电子态密度图

Fig.2 Density of States for d-electron of Ni in NiCu

层的 Cu(100), Cu(111) 面上结构, 使用了紧束缚方法, 在单位位置上用交换相互作用近似, 认为在 Cu(100) 面上 Ni 是铁磁性的, 而在 Cu(111) 面上 Ni 是顺磁性的. Jarlborg 等人^[4], 用 LMT0 方法计算 NiCu 多层膜, 结构模型是一个六个原子的元胞, 即沿(111)方向的 3 层的 Ni 和 3 层的 Cu, 研究认为在接触面 Ni 的磁矩减小了, 但是他们研究的能带和总能计算只是在一个特别面上的结果. 近来有有关 NiCu 多层膜的磁矩的实验测量报道, 使用偏振核反射^[4], 发现随着 Ni 层的厚度变化, 磁矩有明显的依赖关系, 即厚度的小小的变薄, 磁矩有明显的减小. 我们的计算, 从图和表上数据看, 与实验的结果基本上是一致的.

图 2 是 NiCu 超元胞的 Ni 各类原子的 *d* 电子的态密度(DOS)图, 以及纯 Ni 的及 NiCu 的总态密度图. 为了更好地观察费米能级附近的态密度的变化, 图中数据经适当的放大、平移后获得, 如所有数据放大 10 倍, 平移量为自旋朝上与自旋朝下的分界线而定. 从图上看, 金属间的相互作用导致了 *d*-DOS 的分布的一些变化, *d* 态 Ni 没有占满. 图中 Ni_{L1}, Ni_{L2}, Ni_{L3}, Ni_{L4} 的态密度变化不大, 与纯 Ni 的态密度一致, 而 Ni_{L5}, Ni_{L6}, Ni_{L7} 的态密度在费米能级附近变化逐渐明显, 到接触层 Ni_{L7} 自旋朝上和自旋朝下的量几乎一样了. 这说明层间自旋极化的结果使 Cu-Ni 之间电荷发生转移, 从而磁矩发生了变化, 磁性变化随层数变化而急剧变化.

这些结果反应了这样一个事实, 即超薄的 Ni 生长在 Cu(100) 上或复盖在 Cu(001) 上, 相对于体材料 Ni 的磁性有明显的减小^[2,4,11], 而 Ni 单层生长在 Cu(111) 上是没有磁矩的^[4], 这样磁场与局域原子位置的空间相对关系就变清楚了.

另外从表 1 中可看出, 在 NiCu 多层膜的 Cu 层上, 也存在着自旋极化. 它反映层间耦合的存在, 耦合作用的来源是由于 Cu 层中的传导电子产生了自旋极化, 使相邻 Ni 层产生耦合作用, 并使 Cu 层也能维持一部分的自旋波, 结果自旋波可以在整个多层膜中传播. 这与其它 Cu 基磁性多层膜的层间耦合现象是一样的. 如实验上有报道, 在 FeCo/Cu^[12] 中都观察到了自旋波结构, 以及在 [Co(22A)/Cu] 所证实的自旋极化现象.

3 小 结

对 NiCu 多层的三明治式的结构, 采用自洽 LMT0 方法计算, 我们发现 Ni 磁矩随厚度变化而变化, 如图 3 所示, 纵向表示磁矩大小, 横向表示 NiCu 各层变化, 从图上看 Ni 的 5, 6, 7 层急剧减小, 这磁矩的变化与实验测量结果^[2,3]一致. 另外, 从图 3 Cu 层反方向有一点磁矩可以说明在 Cu 层中存在层间耦合的现象. 这与 Cu 基上磁性多层膜的实验^[12]所证实的层间耦合现象相近.

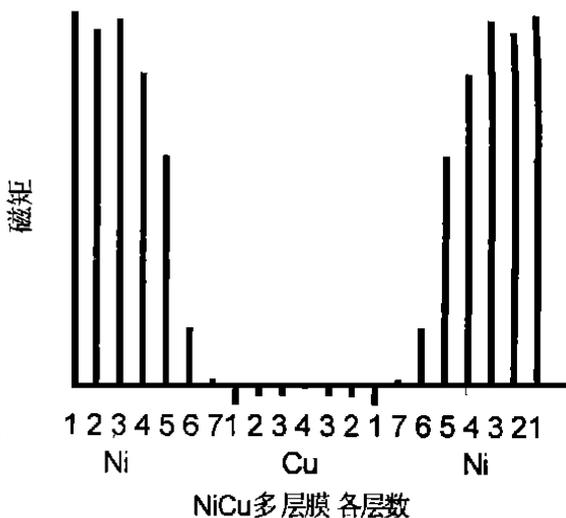


图 3 磁矩与 Ni 层厚的变化关系
Fig. 3 The dependence of the magnetic moment with the Ni film thickness

参考文献:

- [1] Naik R, Poli A, McKague D, et al. Strain-induced perpendicular magnetic anisotropy of $\langle 100 \rangle$ -oriented Ni-Cu superlattices [J]. Phys. Rev., 1995, B51: 3 549– 3 553.
- [2] Voigt J, Ding X L, Fink R, et al. Magnetic hyperfine fields at uncovered ultrathin Ni films on Cu (100) substrate and at single-crystal Ni surfaces [J]. J. Magn. Magn. Mater., 1991, 93: 341– 344.
- [3] Tersoff J, Falicov L M. Magnetic and electronic properties of Ni films, surfaces and interfaces [J]. Phys. Rev., 1982, B26: 6 186– 6 200.
- [4] Jarlborg T, Freeman A J. Electronic structure and magnetism of NiCu films, surfaces, and interfaces [J]. Phys. Rev. Lett., 1980, 45: 653– 656.
- [5] Santos V D, Kuhne C A. Electronic structure and magnetic properties of Ni/Au and Ni/Cu bilayers [J]. Thin Solid Films. 1999, 350: 258– 263.
- [6] Stoeffler D, Ounadjela K, Sticht J, et al. Magnetic polarization of the Pd spacer and interlayer magnetic couplings in Fe/Pd(001) superlattices: First principles calculations [J]. Phys. Rev., 1994, B49(1): 299– 309.
- [7] Fullerton E E, Stoeffler D, Ounadjela K, et al. Structure and magnetism of epitaxially strained Pd(001) films on Fe(001): Experiment and theory [J]. Phys. Rev., 1995, B51(10): 6 364– 6 378.
- [8] Skriver H L. The LMTO Method: Muffin-Tin Orbital and Electron Structure [M]. New York: Springer, 1984.
- [9] von Barth U, Hedin L. A local exchange-correlation potential for the spin polarized case: I [J]. J. Phys., 1972, C5: 1 629– 1 642.
- [10] Chadi D J, Cohen M L. Special points in the Brillouin zone [J]. Phys. Rev., 1973, B8(12): 5 747– 5 753.
- [11] Wang D S, Freeman A J, Krakauer H. Electronic structure and magnetism of Ni overlayers on a Cu (001) substrate [J]. Phys. Rev., 1982, B26: 1 340– 1 351.
- [12] Zhai H R, Zhu X B, Lu M, et al. Interlayers coupling in TM (Fe, FeCo, FeCoNi)/Cu multilayers studied with FMR measurements [J]. J. Magn. Magn. Mat., 1995, 140– 144: 525– 526.

Electronic Structure and Magnetic Properties of NiCu Multilayers

SHEN Han-xing, HUANG Mei-chun, SHEN Yao-wen, ZHU Zi-zhong
(Dept. of Phys., Xiamen Univ., Xiamen 361005, China)

Abstract: The electronic structure of NiCu multilayers were calculated using *ab initio* local-spin-density of the Linear Muffin-Tin Orbital (LMTO) method. The self-consistent calculations were made for superlattice parameters in order to obtain ground state properties of these multilayers. The analysis of the density of states at an equilibrium volume gives a good description of the electronic and magnetic properties.

Key words: magnetic multilayers; electronic band structure; magnetic properties; electronic properties