

УДК 536.63 + 538.116

© 1992

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОГО ПОВЕДЕНИЯ МАГНЕТИЗМА КОЛЛЕКТИВИЗИРОВАННЫХ ЭЛЕКТРОНОВ В НИКЕЛЕ МЕТОДОМ РЕНТГЕНОВСКОЙ ФОТОЭМИССИОННОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

В. И. Гребенников, В. Л. Кузнецов, О. Б. Соколов

Исследованы рентгеновские фотоэмиссионные спектры никеля в интервале температур от 0.5 до 1.3 T_c с целью экспериментальной проверки основных положений современной теории магнетизма коллективизированных электронов. Установлено отсутствие изменения формы спектров с температурой. Этот факт интерпретируется на основе теории тепловых флуктуаций электронной спиновой плотности с учетом короткодействующего ближнего магнитного порядка в парамагнитной фазе.

В последние годы интенсивно исследуется как теоретически, так и экспериментально электронная структура ферромагнитных переходных металлов типа железа, кобальта, никеля при конечных температурах [$1-9$]. Магнетизм в этих металлах формируется коллективизированными электронами незаполненных d -полос. Их свойства традиционно интерпретируются на основе концепции среднего поля (теория Стонера) или ее разновидностях типа функционала спиновой плотности, которые в целом успешно описывают ситуацию при низких температурах. Вместе с тем такой подход приводит к неудовлетворительным результатам при более высоких температурах.

В этом случае требуется совершенствование подхода путем введения представления о тепловых флуктуациях электронной спиновой плотности, которые можно рассматривать как подвижные микроскопические неоднородности спиновой плотности. С ростом температуры число таких неоднородностей увеличивается, что, в частности, приводит к исчезновению результирующей намагниченности в точке Кюри T_c , подобно тому, как это имеет место в модели Гайзенберга для атомных моментов. Напомним, что в теории Стонера в T_c исчезают сами локальные магнитные моменты.

Можно выделить два подхода в теории флуктуаций. В первом подходе предполагается, что локальные магнитные моменты на разных атомах полностью независимы друг от друга, во втором учитывается их пространственная корреляция. Наиболее естественным приемом математического описания флуктуаций спиновой плотности является введение вспомогательных флуктуирующих полей, действующих на электроны. В этом смысле такой подход представляет собой развитие концепции среднего поля: вместо однородного постоянного обменного поля здесь вводится флуктуирующее (изменяющееся в пространстве и времени) поле. Различные его конфигурации обладают разными весами (вероятностями). Задача теории состоит в вычислении соответствующей функции распределения, расчете электронной структуры в полях различных конфигураций и последующем усреднении по всем возможным конфигурациям с самосогласованной функцией распределения.

Целью настоящей работы является экспериментальная проверка вышеизложенных основных положений современной теории магнетизма кол-

лективизированных электронов в переходных металлах. Для этого выполнены тщательные измерения рентгеновских фотоэмиссионных спектров (РФС) никеля в интервале температур от 0.5 до 1.3 T_c .

Ранее аналогичные исследования температурной зависимости обменного расщепления проводились методом ультрафиолетовой фотоэмиссии с угловым разрешением [3], в том числе и с использованием спин-поляризованной техники [4, 5]. Эти исследования позволили измерить величину расщепления в отдельных точках зоны Бриллюэна.

В отличие от цитированных угловых экспериментов метод рентгеновской фотоэмиссии доставляет интегральную информацию о плотности всех заполненных состояний в полосе. Кроме того, рентгеновская фотоэмиссия является локальным методом, позволяющим измерять плотность электронных состояний на отдельных атомах, в то время как в угловых экспериментах фотоэмиссия идет из блоховских состояний с фиксированным волновым вектором, которые делокализованы в координатном пространстве в области $\Delta x = 1/\Delta k$, где Δk — разрешение по волновым векторам. Таким образом, рентгеновский эксперимент несет дополнительную информацию по сравнению с экспериментами с угловым разрешением.

Фазовый переход из ферромагнитного состояния в парамагнитное изучался Кирби и др. [6] в железе методом рентгеновской фотоэмиссионной спектроскопии. Мы сосредоточились на экспериментальном исследовании никеля. Это тем более актуально, что зачастую эти два металла противопоставляются друг другу [1]. В частности, существует мнение о том, что в железе спиновые флуктуации носят атомноподобный характер, в то время как в никеле они имеют более выраженную зонную природу и могут заметно изменять свою величину с температурой.

1. Эксперимент

Эксперименты, связанные с исследованиями температурных зависимостей в РФС спектрах, требуют особой тщательности в подготовке образца и изучения работы спектрометра в широком температурном интервале. Нагрев образца может приводить к переконденсации поверхностных загрязнений и, как следствие, к изменению формы спектра валентной полосы, а также может вызвать изменение геометрических параметров входного устройства энергоанализатора. Для изучения этих процессов в спектрометре ЭС ИФМ-4 был использован образец бескислородной меди, установленный в медный держатель и прогревавшийся в диапазоне температур от 300 до 900 К.

Спектры валентной полосы и разностный спектр приведены на рис. 1. Как видно, температурные изменения в спектрах отсутствуют.

Заметим, что в первых экспериментах наблюдались различия в спектрах, связанные с переконденсацией кислорода и углерода, следы которых были видны в обзорных спектрах. От них удалось избавиться прогревом при 900 К и ионной бомбардировкой аргоном при давлении $5 \cdot 10^{-3}$ Па. После ионной бомбардировки в спектре появляются линии аргона, что может вызвать искажение валентной полосы (ВП). В результате была разработана следующая методика снятия спектров. После ввода в камеру образец прогревался в течение 16 ч при 900 К, затем проводилась съемка ВП, охлаждение до 300 К и повторная съемка ВП. Разностный спектр на рис. 1 демонстрирует отсутствие видимых изменений в спектрах ВП меди при 900 и 300 К.

По этой методике был исследован образец монокристаллического никеля, спектры ВП приведены на рис. 2.

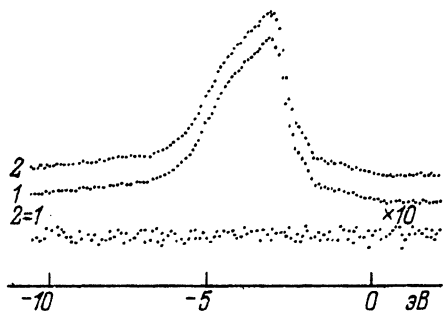


Рис. 1. Рентгеновский фотоэмиссионный спектр меди.
Температура (Т) К: 1 — 300, 2 — 900, их разность (увеличено в 10 раз).

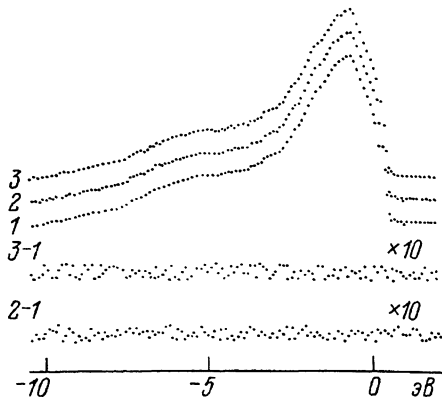


Рис. 2. РФС никеля при разных температурах. Температура (Т), К: 1 — $0.5 T_c$, 2 — $1.0 T_c$, 3 — $1.3 T_c$. Внизу приведены увеличенные в 10 раз разностные спектры.

2. Обсуждение

Из анализа данных эксперимента следует, что рентгеновские фотоэмиссионные спектры в никеле практически не изменяются с ростом температуры, в том числе и при фазовом переходе в парамагнитное состояние. Это свидетельствует в пользу сохранения величины обменного расщепления электронных состояний с противоположными спиновыми проекциями на локальные направления намагниченности. Таким образом, переход в парамагнитную фазу идет по флуктуационному сценарию, путем разупорядочения локальных магнитных моментов, а не посредством их исчезновения.

Возникает вопрос о величине ближнего магнитного порядка. С одной стороны, экспериментально наблюдается [¹⁰] большой скачок теплоемкости в окрестности температуры Кюри, что можно трактовать как результат резкого исчезновения ближнего порядка в парамагнитной фазе. Эта тенденция, в частности, подтверждается расчетами теплоемкости никеля [¹¹] с разными граничными волновыми векторами для спиновых флуктуаций. С другой стороны, сохранение формы фотоэмиссионных спектров требует наличия корреляции локальных моментов на близко расположенных атомах. Проиллюстрируем последнее утверждение на простой модели.

На рис. 3 модельный рентгеновский фотоэмиссионный спектр, рассчитанный в схеме полностью хаотических флуктуаций при $T = 1.2 T_c$ (штриховая линия), сравнивается с соответствующим спектром (сплошная линия) основного ферромагнитного состояния. Несмотря на то что величины локального обменного расщепления в обоих случаях примерно одинаковы, спектры все-таки заметно отличаются друг от друга (температурные изменения больше экспериментально наблюдаемых). Причина такого отличия заключается в полном пренебрежении ближним магнитным порядком в теории одноузельных спиновых флуктуаций [²]. Штрихпунктиром изображен спектр, рассчитанный по теории Стонера, в котором выше T_c обменное расщепление полностью отсутствует. Здесь четко видно сужение спектра.

Итак, учет хаотических флуктуаций спиновой плотности позволяет приблизить расчетный спектр к наблюдаемому, но одного этого шага не-

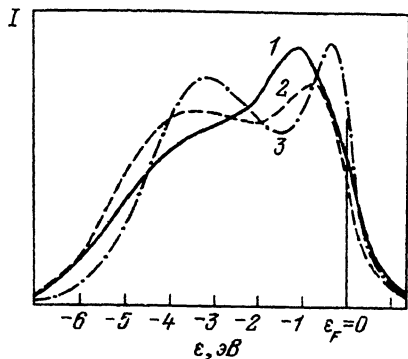


Рис. 3. Расчетные модельные РФС.

1 — при $T=0$, 2 — при $T=1.2 T_C$ в методе хаотических флуктуаций; 3 — по теории среднего поля Стонера при $T \geq T_C$.

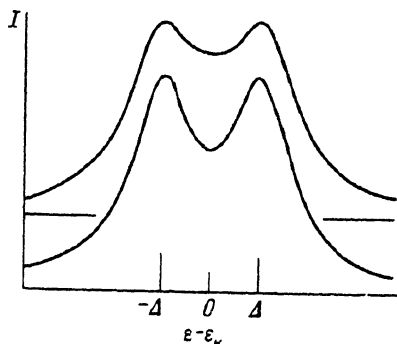


Рис. 4. Обменное расщепление зонного состояния с учетом пространственной корреляции спиновых флуктуаций.

Нижняя кривая при $T=0$, верхняя — при $T=1.25 T_C$.

достаточно. Следующий шаг — введение ближнего магнитного порядка. Соответствующая теория развита в работе [9]; там же на примере железа проиллюстрированы конкретные эффекты. Основным результатом таков. Размеры областей ближнего порядка весьма малы. Так, ширина спиновой корреляционной функции на половине высоты составляет около 4 Å при $T=1.25 T_C$. Тем не менее этого вполне достаточно для формирования резких линий в парамагнитном рассеянии нейтронов [12] и сохранения обменного расщепления в спектрах фотоэмиссии с угловым разрешением [4, 5].

Соответствующие расчетные фотоэмиссионные линии в ферро- и парамагнитном состоянии представлены на рис. 4. Каждое зонное состояние с энергией ϵ_k расщепляется на два за счет обменного взаимодействия. Температура практически не меняет величину расщепления, а приводит к некоторому размытию линий. Рентгеновский фотоэмиссионный спектр определяется суммой этих линий для всех энергий ϵ_k и, следовательно, не будет заметным образом изменять форму при переходе в парамагнитное состояние, что и наблюдается на эксперименте (рис. 2).

Таким образом, в настоящей работе экспериментально установлено отсутствие заметных изменений в рентгеновских фотоэмиссионных спектрах никеля в температурном интервале от 0.5 до 1.3 T_C . Дана интерпретация этого факта на основе теории тепловых флуктуаций электронной спиновой плотности. Наличие областей корреляции спиновых флуктуаций размером в 1—2 межатомных расстояния обеспечивает сохранение формы спектров и в то же время согласуется с данными по теплоемкости.

Список литературы

- [1] Мория Т. // Спиновые флуктуации в магнетиках с коллективизированными электронами. М.: Мир, 1988. 288 с.
- [2] Гребенников В. И., Туров Е. А. // Динамические и кинетические свойства магнетиков. М.: Наука, 1986. С. 9—36.
- [3] Eastman D. E., Himpfel F. J., Knapp J. A. // Phys. Rev. Lett. 1978. V. 40. N 23. P. 1514—1517.
- [4] Hopster H., Raue R., Güntherodt G., Kisker E., Clauberg R., Campagna M. // Phys. Rev. Lett. 1983. V. 51. N 9. P. 829—832.
- [5] Kisker E., Schröder K., King F. K., Gudat W., Campagna M. // Phys. Rev. B. 1985. V. 31. N 1. P. 329—339.
- [6] Kirby R. E., Kisker E., King F. K., Gudat W., Garwin E. L. // Sol. State Commun. 1985. V. 5. P. 425—429.
- [7] Гребенников В. И. // ФММ. 1986. Т. 61. N 3. С. 488—495.

- [8] Гребенников В. И. // ФММ. 1988. Т. 66. N 3. С. 421—429.
- [9] Grebennikov V. I. // J. Magn. Magn. Mat. 1990. V. 84. P. 59—68.
- [10] Wohlfarth E. P. // Ferromagnetic materials. Amsterdam: North-Holland, 1980. V. 1. P. 3—70.
- [11] Розенфельд Е. В., Сивенцев А. А., Ирихин Ю. П., Носкова Л. М. // ФТТ. 1991. Т. 31. N 1. С. 202—210.
- [12] Brown P. J., Capellmann H., Deportes J., Givord D. J., Kisker E. // J. Magn. Magn. Mat. 1982. V. 30. P. 243—253.

Институт физики металлов
УрО РАН
Екатеринбург

Поступило в Редакцию
10 декабря 1991 г.
