

Über den Ferromagnetismus dünner Schichten*

Von R. ABBEL

Aus dem Institut für Theoretische Physik der Justus Liebig-Universität Gießen
(Z. Naturforschg. 18 a, 371–379 [1963]; eingegangen am 2. November 1962)

Die DÖRINGSche Berechnung der Sättigungsmagnetisierung dünner Schichten wird auf zwei weitere Schichttypen ausgedehnt. Zunächst wird eine Schicht mit einfach-kubischer Gitterstruktur und (101)-Lage der Oberfläche betrachtet und dann eine Schicht des kubisch-raumzentrierten Gitters mit (001)-Oberfläche. Dabei treten zwei neue Effekte auf: Einmal ist die Komponente des Ausbreitungsvektors senkrecht zur Oberfläche mit den anderen Komponenten gekoppelt. Zum anderen treten in beiden Fällen Oberflächenwellen auf. Zur Berechnung der Sättigungsmagnetisierung werden Näherungsannahmen gemacht, die denselben Gültigkeitsanspruch haben wie das $T^{3/2}$ -Gesetz. Es zeigt sich, daß bei fester Schichtlagenzahl die auf den Wert des kompakten Materials bezogene Sättigungsmagnetisierung etwas tiefer liegt als die der einfach-kubischen (001)-Schicht. Weiterhin wird untersucht, wie sich die von RADO für das kompakte Material gewonnene Abhängigkeit der lokalen Magnetisierung von dem Abstand zur Oberfläche ändert, wenn die endliche Dicke einer Schicht berücksichtigt wird.

Vom atomtheoretischen Standpunkt aus wurde das Problem der spontanen Magnetisierung dünner ferromagnetischer Schichten zuerst von KLEIN und SMITH¹ aufgegriffen. Ausgehend von der BLOCHschen Spinwellentheorie² fanden sie, daß sich die spontane Magnetisierung eines ferromagnetischen Körpers erniedrigen sollte, wenn man seine Abmessungen in einer Dimension immer mehr verkleinert. Während in dieser Arbeit nur der Fall eines einfach-kubischen Gitters behandelt wurde, dehnten GLASS und KLEIN³ die Rechnung auf das kubisch-raumzentrierte und kubisch-flächenzentrierte Gitter aus und fanden nur geringe Abweichungen vom einfach-kubischen Fall.

Es liegt im Wesen der Spinwellentheorie, daß ihr Gültigkeitsbereich auf Temperaturen beschränkt bleibt, die klein sind im Vergleich zur CURIE-Temperatur. Trotzdem wurde es verschiedentlich als Bestätigung der KLEIN-SMITH-GLASSschen Überlegungen angesehen, daß mit Hilfe eines Vorschlages von DRIGO⁴ die theoretischen Magnetisierungskurven den bei höheren Temperaturen gemessenen experimentellen Kurven angepaßt werden konnten. Auch CRITTENDEN und HOFFMAN⁵ fanden auf diesem Wege Übereinstimmung zwischen dem Verlauf der Magnetisierung ihrer Nickelschichten mit den vorliegenden Kurven von KLEIN und SMITH. Sie wiesen

aber schon auf die Fragwürdigkeit der DRIGOSchen Methode hin. Denn es stellte sich immer mehr heraus, daß die Eigenschaften dünner Schichten in hohem Maße durch die Herstellungsbedingungen bestimmt waren. Daher waren die Messungen von NEUGEBAUER⁶ von besonderem Interesse. Er konnte seine im Hochvakuum aufgedampften Schichten auch im Hochvakuum untersuchen. Da die Temperaturen, bei denen er seine Messungen vornahm, 77 °K bzw. 300 °K betragen, konnte er die Ergebnisse direkt mit den KLEIN-SMITHschen Resultaten vergleichen. Im Gegensatz zur Theorie fand nun NEUGEBAUER, daß bis herunter zu Dicken von 20 Å keine Abnahme der spontanen Magnetisierung zu beobachten war. Die Verhältnisse sollten also ähnlich liegen wie bei kleinen ferromagnetischen Teilchen, bei denen auch bis zu Teilchenabmessungen von etwa 15 Å die spontane Magnetisierung konstant bleibt.

Inzwischen hatte VALENTA^{7,8} das Problem von einem anderen Ausgangspunkt her behandelt. Er ging von einer Molekularfeldtheorie aus, die sich eng an das NÉELSche Untergittermodell für den Ferrimagnetismus anlehnte. VALENTA erhielt eine nur sehr schwache Abhängigkeit der Magnetisierung und damit der CURIE-Temperatur von der Schichtdicke. CORCIOVEI⁹ erweiterte die VALENTASchen Arbeiten durch die Berücksichtigung von Gliedern hö-

* Dissertation Gießen 1962.

¹ M. J. KLEIN u. R. S. SMITH, Phys. Rev. **81**, 378 [1951].

² F. BLOCH, Z. Phys. **61**, 206 [1930].

³ J. GLASS u. M. J. KLEIN, Phys. Rev. **109**, 288 [1958].

⁴ A. DRIGO, Nuovo Cim. **8**, 498 [1951].

⁵ E. C. CRITTENDEN u. R. W. HOFFMAN, Rev. Mod. Phys. **25**, 310 [1953].

⁶ C. A. NEUGEBAUER, Phys. Rev. **116**, 1441 [1959].

⁷ L. VALENTA, Czech. J. Phys. **7**, 127 [1957].

⁸ L. VALENTA, Czech. J. Phys. **7**, 136 [1957].

⁹ A. CORCIOVEI, Czech. J. Phys. **10**, 568 [1960].



herer Ordnung bei der Berechnung der Zustands-
summe. Dies führt in allen Fällen zu einer Vermin-
derung der CURIE-Temperatur bzw. der spontanen
Magnetisierung im Vergleich zu VALENTAS Ergeb-
nissen.

HELLENTHAL¹⁰ versucht das Verhalten dünner Schichten aus der Vorstellung heraus zu klären, daß diese aus einzelnen Bereichen bestehen, die durch ihr Molekularfeld miteinander gekoppelt sind. Er erhält eine sogenannte scheinbare spontane Magnetisierung der Schicht, die bei einer Anomalietemperatur T_A zusammenbricht, während die eigentliche spontane Magnetisierung der Bereiche erst bei höheren Temperaturen abfallen sollte.

Die vorliegenden Untersuchungen schließen sich an die Arbeit von DÖRING¹¹ an. DÖRING erkannte am Beispiel des einfach-kubischen Gitters, daß die zur Abzählung der Spinwellenzustände im unendlich ausgedehnten Material benutzte Forderung der Periodizität in einem großen Grundgebiet bei einer dünnen Schicht nicht mehr möglich ist. Es müssen nämlich an der Oberfläche die durch das Abschneiden der Austauschkopplungen verlangten Randbedingungen erfüllt sein. Das hatten KLEIN, SMITH und GLASS nicht beachtet. Sie hatten in Richtung der Normalen zur Schicht Periodizität mit der Schichtdicke vorausgesetzt. DÖRING¹² klärte auch die Ursache der bis dahin nur unbefriedigend diskutierten Divergenzen, die dann auftreten, wenn man in der Zustands-
summe des Ferromagnetikums ohne Feld die Spinwelle mit verschwindendem Ausbreitungsvektor nicht ausschließt. Im dreidimensionalen Gitter verwischte die Approximation der Summe durch ein Integral über den k -Raum diese Divergenz, während sie bei der Behandlung des Flächengitters und der linearen Kette deutlich wurde und BLOCH² zu dem Schluß führte, diese Gittertypen seien nicht ferromagnetisch.

Ähnlich wie bei der Erweiterung der Arbeit von KLEIN und SMITH durch GLASS und KLEIN soll zunächst die DÖRINGSche Überlegung auf andere Gittertypen ausgedehnt werden. Dabei zeigt sich, daß die durch die Austauschwechselwirkung geforderten Randbedingungen bei anderen Gittertypen und anderer Lage des Gitters zur Oberfläche das Auftreten von Oberflächenspinwellen bedingen. In einem weiteren Teil der vorliegenden Arbeit wird dann untersucht, in welcher Weise die lokale Magnetisierung

innerhalb der Schicht variiert. Über diese Frage liegt bisher nur eine Notiz von RADO¹³ vor. RADO betrachtete ein unendlich ausgedehntes Ferromagnetikum und nahm an, daß die Spinwellen an der Oberfläche ein Maximum haben. Das bedeutet, daß die Magnetisierung an der Oberfläche durch Anregung thermischer Spinwellen doppelt so stark erniedrigt ist wie im Innern. Dieses Ergebnis wird beim Übergang zu dünnen Schichten modifiziert.

I. Die Magnetisierung der einfach-kubischen (101)-Schicht

Der übliche Ausgangspunkt zur Spinwellentheorie ist der HAMILTON-Operator

$$\mathcal{H} = \frac{J}{4} \sum_{\langle \mu, \nu \rangle} (1 - 4 \mathfrak{S}_\mu \mathfrak{S}_\nu) - 2 \mu_B H \sum_\nu S_\nu^H. \quad (1)$$

\mathfrak{S}_μ ist der Operator zum Vektor des Spindrehimpulses in Einheiten von \hbar , entsprechend S_ν^H die Komponente in Richtung des Feldes H . μ_B ist das BOHRSCHE Magneton und J das Austauschintegral. Die erste Summe läuft über alle Nachbarpaare des Gitters. Im folgenden wird das ursprüngliche HEISENBERGSche Modell zugrunde gelegt, nach dem sich an jedem Atom ein lokalisierter Spin mit dem Betrag $\frac{1}{2} \hbar$ befindet. Ψ_μ sei die normierte Zustandsfunktion zu einer Spinumklappung (Minusspin) am μ -ten Atom aus der Parallelstellung aller anderen Spins. Dann erhält man eine Eigenfunktion zu (1) mit einem Minusspin im Gitter in der Form

$$\Psi = \sum_\nu a_\nu \Psi_\nu. \quad (2)$$

Die Normierung von Ψ sorgt dafür, daß $|a_\mu|^2$ die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten einer Spinumklappung am μ -ten Atom angibt. (1) und (2) führen zur BLOCHSchen Differenzengleichung

$$(\varepsilon - 2 \mu_B H) a_\mu = J \sum_\nu (a_\mu - a_\nu). \quad (3)$$

Hierin wird rechts über alle nächsten Nachbarn des Atoms μ summiert. Der Eigenwert $\varepsilon = 0$ gehört dabei zum Zustand völliger Ausrichtung im Feld.

Für innere Atome läßt sich (3) befriedigen durch die Spinwellen

$$a_\mu = c \exp \{i \mathfrak{f} \mathbf{r}_\mu\}. \quad (4)$$

¹⁰ W. HELLENTHAL, Z. angew. Phys. **13**, 147 [1961].

¹¹ W. DÖRING, Z. Naturforschg. **16 a**, 1146 [1961].

¹² W. DÖRING, Z. Naturforschg. **16 a**, 1008 [1961].

¹³ G. T. RADO, Bull. Amer. Phys. Soc. **II**, 2, 127 [1957].

Die Oberflächenatome haben nun eine gestörte Umgebung. In dem von DÖRING¹¹ behandelten Fall einer Schicht mit kubisch-einfacher Gitterstruktur und (001)-Lage der Oberfläche – kurz ke.(001)-Schicht – fehlt den Randatomen jeweils ein nächster Nachbar, bei der ke.(101)-Schicht fehlen zwei (vgl. Abb. 1). In beiden Fällen führt der Ansatz

$$a(x, y, z) = c \cdot \exp \{i(k_x x + k_y y)\} \cdot (\exp \{i k_z z\} + C \exp \{-i k_z z\}) \quad (5)$$

zur Lösung. Die Koordinaten (x, y, z) beschreiben die Gitterplätze in Einheiten der Gitterkonstanten, dabei ist die z -Achse normal zur Oberfläche gewählt worden mit dem Ursprung in der Mitte der Schicht

$$C = -\exp \{i k_z (D-1) / \sqrt{2}\} \frac{1 - \exp \{i k_z / \sqrt{2}\} \cos(k_x / \sqrt{2})}{1 - \exp \{-i k_z / \sqrt{2}\} \cos(k_x / \sqrt{2})} \\ = -\exp \{-i k_z (D-1) / \sqrt{2}\} \frac{1 - \exp \{-i k_z / \sqrt{2}\} \cos(k_x / \sqrt{2})}{1 - \exp \{i k_z / \sqrt{2}\} \cos(k_x / \sqrt{2})}. \quad (7)$$

Daraus folgt $C = \pm 1$.

Im Gegensatz zum Fall der (001)-Schicht ist hier k_z mit k_x gekoppelt. Um das zu übersehen, setzen wir in (7)

$$C = -\exp \{i[k_z(D-1) / \sqrt{2} - \alpha]\}, \quad (8)$$

also $e^{i\alpha} = \frac{1 - \exp \{-i k_z / \sqrt{2}\} \cos(k_x / \sqrt{2})}{1 - \exp \{i k_z / \sqrt{2}\} \cos(k_x / \sqrt{2})}$

oder $\tan \frac{\alpha}{2} = \frac{\cos(k_x / \sqrt{2}) \sin(k_z / \sqrt{2})}{1 - \cos(k_x / \sqrt{2}) \cos(k_z / \sqrt{2})}; \quad (9)$

somit erhalten wir eine implizite Bestimmungsgleichung für k_z aus $C = \pm 1$, nämlich

$$\frac{k_z}{\sqrt{2}} = \frac{\alpha}{D-1} + \frac{\pi}{D-1} n_z. \quad (10)$$

Dabei gehören zu geradem n_z die in z antisymmetrischen Lösungen mit $C = -1$, zu ungeradem n_z die symmetrischen Lösungen mit $C = +1$.

Durch (9) und (10) ist die Reihe der erlaubten k_z -Werte bei vorgegebenem D und k_x bestimmt. In Abb. 2 sind diese beiden Kurvenscharen für einige Parameterwerte aufgetragen. Die erlaubten k_z sind durch die Schnittpunkte festgelegt.

Für $n_z = 0$ und verschiedene D erhält man das in $\alpha/2 = 0$ mündende Geradenbüschel. $n_z = 0$ und $\alpha/2 = 0$ bedeutet aber das Verschwinden der Lösung (5). Die ersten nichtverschwindenden Lösungen werden daher von den anderen Schnittpunkten zu

(Abb. 1). Die D Atomlagen parallel zur Oberfläche werden beschrieben durch

$$z = \frac{D-1}{2\sqrt{2}} - \frac{v}{\sqrt{2}}; \quad v = 0, 1, \dots, D-1. \quad (6)$$

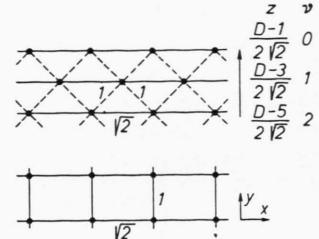


Abb. 1. Die Atomlagen in der einfach-kubischen Schicht mit (101)-Oberfläche.

Die Differenzengleichung (3) wird von (5) erfüllt, wenn C folgender Bedingung genügt:

$n_z = 0$ bestimmt. Dabei tritt der Fall auf, daß es zu jedem D einen Grenzwert k_{xg} gibt, oberhalb dessen kein reeller Schnittpunkt auftritt. Dieser Wert folgt aus der Gleichheit der Steigungen:

$$\cos(k_{xg} / \sqrt{2}) = (D-1) / (D+1). \quad (11)$$

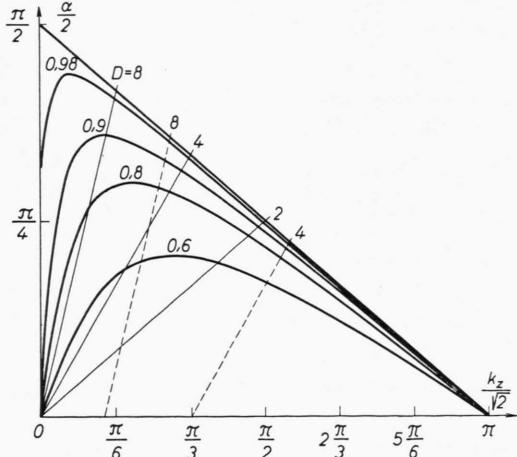


Abb. 2. Beschreibung im Text.

Beim Überschreiten dieses Wertes treten Lösungen mit imaginärem k_z auf, also Oberflächenwellen der Gestalt

$$a = c \cdot \exp \{i(k_x x + k_y y)\} (e^{\sigma z} - e^{-\sigma z}). \quad (12)$$

Sie sind in z antisymmetrisch wie die ebene Welle, aus der sie hervorgegangen sind.

$n_z = 1, 2, \dots$ gibt abwechselnd symmetrische und antisymmetrische Lösungen bis zum maximalen Wert $n_z = D - 1$. Hier ist $\alpha/2 = 0$ und $k_z/\sqrt{2} = \pi$. Nun sind aber die Lösungen nur sinnvoll an den diskreten z -Werten der Schichtebenen. Diese sind nach der Wahl unseres Koordinatensystems in (6) angegeben. Ihr Einsetzen in (5) zeigt, daß für $n_z = D - 1$ die Lösungen identisch verschwinden. An deren Stelle finden wir auch hier Oberflächenwellen, und zwar die symmetrischen

$$a = c \cdot \exp \{i(k_x x + k_y y)\} (e^{\sigma z} + e^{-\sigma z}). \quad (13)$$

Die Abklingkonstanten σ hängen wieder mit k_x zusammen. Einsetzen von (12) bzw. (13) in die Differenzengleichung (3) gibt für die antisymmetrische Lösung die Bestimmungsgleichung

$$\cos \frac{k_x}{\sqrt{2}} = \frac{\sinh[\sigma(D-1)/2\sqrt{2}]}{\sinh[\sigma(D+1)/2\sqrt{2}]} \quad (14)$$

und für die symmetrische Lösung

$$\cos \frac{k_x}{\sqrt{2}} = \frac{\cosh[\sigma(D-1)/2\sqrt{2}]}{\cosh[\sigma(D+1)/2\sqrt{2}]} . \quad (15)$$

Damit haben wir den gesamten Lösungssatz bestimmt. Er ist in (24 a – c) zusammengestellt mit den zugehörigen Eigenwerten, wobei die Normierungskonstanten innerhalb der später benutzten k^2 -Näherung angegeben sind.

Die Energie ε in Abhängigkeit vom Wellenvektor k ist in dem Koordinatensystem der Abb. 1 gegeben durch

$$\varepsilon = 2 \mu_B H + 2 J \left(3 - \cos k_y - 2 \cos \frac{k_x}{\sqrt{2}} \cos \frac{k_z}{\sqrt{2}} \right). \quad (16)$$

Im Gültigkeitsbereich des $T^{3/2}$ -Gesetzes, auf den wir uns beschränken wollen, geht in die Berechnung der spontanen Magnetisierung nur das Quadrat von k ein. In dieser Näherung wird

$$\varepsilon = 2 \mu_B H + J(k_x^2 + k_y^2 + k_z^2). \quad (17)$$

Bei der Berechnung der Sättigungsmagnetisierung nach dem üblichen Verfahren tritt erschwerend hinzu, daß k_x und k_z nicht unabhängig voneinander sind. Die analytische Behandlung dieses Zusammen-

hangs war nicht möglich. Daher wurde eine Näherungsmethode gewählt. Diese besteht darin, daß für $n_z = 1, 2, \dots, D - 1$ alle Kurven (9) durch die Gerade

$$\frac{1}{2} \alpha = -\frac{1}{2} (k_z/\sqrt{2}) + \frac{1}{2} \pi \quad (18)$$

approximiert werden. Das ergibt zusammen mit (10)

$$\begin{aligned} k_z &= (\sqrt{2} \pi/D) (n_z + 1) = (\sqrt{2} \pi/D) n; \\ n &= n_z + 1 = 2, 3, \dots, D - 1. \end{aligned} \quad (19)$$

Die Berechtigung für diese Näherung kann man aus Abb. 2 ablesen, in die für $D = 4$ und 8 gestrichelt die Geraden

$$\frac{1}{2} \alpha = \frac{1}{2} (D - 1) k_z/\sqrt{2} - \frac{1}{2} \pi \quad (n_z = 1)$$

eingezeichnet sind. Der zu $n_z = 0$ gehörende k_z -Wert würde mit dieser Approximation dahingegen nur schlecht erfaßt. Seine Abhängigkeit von k_x wird aus (7) entnommen. Mit $C = -1$ kann man diese Formel umschreiben in

$$\cos \frac{k_x}{\sqrt{2}} = \frac{\sin[k_z(D-1)/2\sqrt{2}]}{\sin[k_z(D+1)/2\sqrt{2}]} . \quad (20)$$

In erster Näherung – d. h. $\cos(k_x/\sqrt{2}) = 1$ – erhält man, wie zu erwarten,

$$k_z = \sqrt{2} \pi/D ,$$

in der nächsten Näherung dann

$$k_z = \frac{\sqrt{2} \pi}{D} - \frac{\sqrt{2}}{D} \cot \frac{\pi}{2D} \cdot \frac{k_x^2}{4} . \quad (21)$$

Mit diesem Entwicklungsschritt begnügen wir uns, da wir uns konsequent auf Glieder proportional zu k_x^2 beschränken wollen.

Die Eigenwerte der beiden Oberflächenwellen sind

$$\varepsilon = 2 \mu_B H + J(k_x^2 + k_y^2 - \sigma^2) . \quad (22)$$

Hierbei geht der Energiewert der Welle zu $n_z = 0$ glatt in den der entsprechenden Oberflächenwelle über. Den Zusammenhang vom σ der Oberflächenwelle zu $n_z = D - 1$ und k_x erschließt man aus (15). In erster Näherung ergibt sich

$$\sigma^2 = (1/D) k_x^2 . \quad (23)$$

Die Ergebnisse können wir nun zusammenfassen:

a) $n_z = n - 1 = 1, 2, \dots, D - 2$,

$$a = \sqrt{\frac{2}{N}} \exp \{i(k_x x + k_y y)\} \cdot \begin{cases} \sin k_z z, & \text{wenn } n_z \text{ gerade,} \\ \cos k_z z, & \text{wenn } n_z \text{ ungerade,} \end{cases} \quad (24 \text{ a})$$

$$\varepsilon = 2 \mu_B H + J(k_x^2 + k_y^2 + (2 \pi^2/D^2) n^2);$$

b) $n_z = 0$,

$$a = \sqrt{\frac{2}{N}} \exp \{i(k_x x + k_y y)\} \cdot \begin{cases} \sin k_z z, & \text{wenn } k_x \leq k_{xg}, \\ \sinh \sigma z, & \text{wenn } k_x \geq k_{xg}, \end{cases} \quad (24 \text{ b})$$

$$\varepsilon = 2 \mu_B H + J(k_y^2 + A^2 k_x^2 + (2\pi^2/D^2)) \quad \text{mit} \quad A^2 = 1 - (\pi/D^2) \cot(\frac{1}{2}\pi/D);$$

c) $n_z = D - 1$,

$$a = \sqrt{1/N} \exp \{i(k_x x + k_y y)\} \cosh \sigma z, \quad (24 \text{ c})$$

$$\varepsilon = 2 \mu_B H + J(k_y^2 + B^2 k_x^2) \quad \text{mit} \quad B^2 = 1 - (1/D).$$

Im Rahmen der gewählten Näherung ($T^{3/2}$ -Gesetz) kann man nach DYSON¹⁴ mit einer ungestörten Überlagerung von Spinwellen rechnen. Dann ist das Verhältnis der Magnetisierung M zur Magnetisierung am absoluten Nullpunkt (M_0) gegeben durch

$$\frac{M}{M_0} = 1 - \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\exp \{\varepsilon(\mathbf{k})/\varkappa T\} - 1}. \quad (25)$$

Darin ist \varkappa die BOLTZMANN-Konstante, und die Summe geht über alle erlaubten \mathbf{k} -Werte. Bei ihrer Berechnung kann man für einen genügend großen Periodizitätsbereich die k_x - und k_y -Komponente als kontinuierlich ansehen und über sie integrieren. Wir wählen in der (x, y) -Ebene ein rechteckiges Grund-

gebiet mit der Periode G . Dann ist

$$k_x = \frac{2\pi}{\sqrt{2}G} n_x, \quad k_y = \frac{2\pi}{G} n_y$$

$$\text{mit} \quad n_{x,y} = -(\frac{1}{2}G - 1), \dots, 0, \dots, \frac{1}{2}G.$$

Bei Beschränkung auf tiefe Temperaturen darf man n_x und n_y bis unendlich laufen lassen, da die überzähligen Summanden keinen wesentlichen Beitrag zur Summe liefern.

Dagegen ist der Abstand der k_z -Werte bei kleinen Schichtdicken relativ groß. Die Summen über n_z werden daher gesondert durchgeführt. Außerdem werden nach dem vorhergehenden die Summenglieder $n_z = 0$ und $n_z = D - 1$ getrennt behandelt.

Wir erhalten nach dem Einsetzen von (24 a) bis (24 c) und mit den Abkürzungen

$$\gamma = \frac{2 \mu_B H}{\varkappa T}, \quad \Theta = \frac{\varkappa T}{J}, \quad \alpha = \frac{2\pi}{G\sqrt{\Theta}}, \quad \beta = \frac{\sqrt{2}\pi}{D\sqrt{\Theta}} \quad (26)$$

$$\begin{aligned} \frac{M_0 - M}{M_0} &= \frac{2}{N} \sum_{n_x, n_y} \left[\sum_{n=2}^{D-1} \frac{1}{\exp \{\gamma + \alpha^2(\frac{1}{2}n_x^2 + n_y^2) + \beta^2 n^2\} - 1} \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{\exp \{\gamma + \alpha^2(\frac{1}{2}A^2 n_x^2 + n_y^2) + \beta^2\} - 1} + \frac{1}{\exp \{\gamma + \alpha^2(\frac{1}{2}B^2 n_x^2 + n_y^2)\} - 1} \right] \\ &= \frac{2}{N} \frac{\sqrt{2}\pi}{\alpha^2} \int_0^\infty \left[\sum_{n=2}^{D-1} \frac{1}{\exp \{\gamma + \varrho^2 + \beta^2 n^2\} - 1} + \frac{1}{A} \frac{1}{\exp \{\gamma + \varrho^2 + \beta^2\} - 1} + \frac{1}{B} \frac{1}{\exp \{\gamma + \varrho^2\} - 1} \right] 2\varrho d\varrho \\ &= \frac{2}{N} \frac{\sqrt{2}\pi}{\alpha^2} \left[- \sum_{n=2}^{D-1} \ln(1 - e^{-\gamma - \beta^2 n^2}) - \frac{1}{A} \ln(1 - e^{-\gamma - \beta^2}) - \frac{1}{B} \ln(1 - e^{-\gamma}) \right]. \end{aligned} \quad (27)$$

In den folgenden Abschnitten werden wir als Beispiel den Temperaturwert $T = \frac{1}{4}T_C$ (T_C : CURIE-Temperatur) herausgreifen. Nach RUSHBROOKE und Wood¹⁵ ist der Zusammenhang zwischen der Größe Θ und der relativen Temperatur T/T_C beim einfach-kubischen Gitter mit $S = \frac{1}{2}$ gegeben durch

$$\Theta = 1,7 (T/T_C). \quad (28)$$

Daraus kann man etwa für Nickel mit $T_C = 631^\circ\text{K}$ die Austauschkonstante zu $J = 3,2 \cdot 10^{-2}$ eV berechnen, d. h. $\gamma = (4,7 \cdot 10^{-9}/\Theta) \cdot H/\text{Amp m}^{-1}$. Mit $H = 850$ Amp/m $\cong 10$ Oe erhält man den schon von DÖRING

¹⁴ F. J. DYSON, Phys. Rev. **102**, 1217 [1956].

¹⁵ G. S. RUSHBROOKE u. P. J. WOOD, Mol. Phys. **1**, 257 [1958].

benutzten Wert $\gamma = 4 \cdot 10^{-6}/\Theta$. Für nicht zu dicke Schichten und zu tiefe Temperaturen ist also immer $\beta^2 \gg \gamma$ und $\gamma \ll 1$. Wenn man noch $N = G^2 D$ berücksichtigt, kann man in guter Näherung weiterschreiben:

$$\frac{M_0 - M}{M_0} = \frac{\Theta}{\sqrt{2} \pi D} \left[- \sum_{n=2}^{D-1} \ln(1 - e^{-\beta^2 n^2}) - \frac{1}{A} \ln(1 - e^{-\beta^2}) - \frac{1}{B} \ln \gamma \right]. \quad (29)$$

Die noch verbleibende Summe berechnete bereits DÖRING¹¹ für kleine β nach der EULER-MACLAURINSCHEN Summenformel. Für große β genügt die Berücksichtigung des größten Summanden. DÖRING erhielt

$$- \sum_{n=1}^{\infty} \ln(1 - e^{-\beta^2 n^2}) = \begin{cases} e^{-\beta^2} & \text{für } \beta \gg 1 \\ (\sqrt{\pi}/2\beta) \zeta(\frac{3}{2}) - \ln(2\pi/\beta) & \text{für } \beta \ll 1, \end{cases}$$

($\zeta(x)$ ist die RIEMANNSCHE Zeta-Funktion). Damit wird schließlich

$$\frac{M_0 - M}{M_0} = \begin{cases} \frac{\Theta}{\sqrt{2} \pi D} \left[\frac{1}{A} e^{-\beta^2} - \frac{1}{B} \ln \gamma \right] & \text{für } \beta \gg 1 \\ \frac{\zeta(\frac{3}{2})}{4\sqrt{\pi^3}} \Theta^{3/2} - \frac{\Theta}{\sqrt{2} \pi D} \left[\ln \sqrt{2\Theta} D + \frac{1-A}{A} \ln(1 - e^{-\beta^2}) + \frac{\ln \gamma}{B} \right] & \text{für } \beta \ll 1. \end{cases} \quad (30 \text{ a})$$

Man erkennt sofort, daß (30 b) für $D \rightarrow \infty$ den erwarteten BLOCHSCHEN Wert annimmt. Der Vergleich mit dem Resultat bei der ke.(001)-Schicht zeigt folgendes. Einmal tritt an Stelle des dortigen D hier $D/\sqrt{2}$ auf, was einfach aus der entsprechend dichten Lage der Schichtebenen parallel zur Oberfläche folgt. Dann machen sich aber besonders bei den dünnen Schichten die neuen Oberflächeneffekte bemerkbar; in der von D abhängigen Konstanten A wirkt sich die starke Abhängigkeit des k_z -Wertes für $n_z = 0$ von k_x aus und in der Konstanten B das Auftreten der Oberflächenwelle für $n_z = D - 1$. Diese Einflüsse nehmen mit wachsender Schichtdicke ab und zeigen einen stetigen Übergang in die DÖRINGSCHE Formel mit geändertem D .

In Abb. 3 ist der Verlauf der Magnetisierung für einige Parameterwerte D aufgetragen. Aus ihr wurde

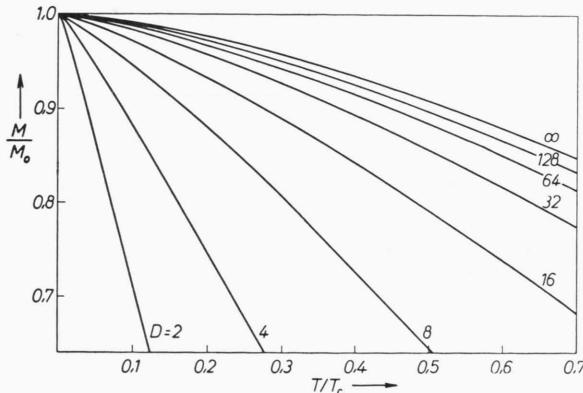


Abb. 3. Die Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung von der Temperatur bei einfach-kubischen (101)-Schichten.

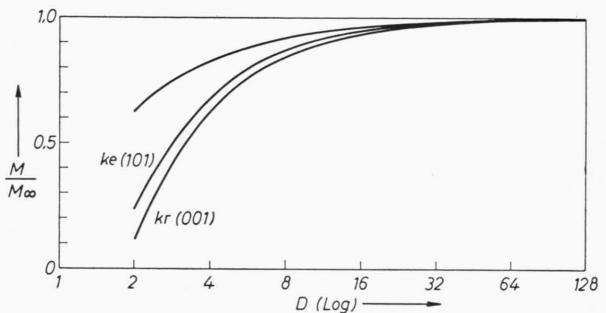


Abb. 4. Die Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung bezogen auf die des Blockmaterials von der Atomlagenzahl für die einfach-kubische (001)- und (101)-Schicht und die kubisch-raumzentrierte (001)-Schicht bei $T = \frac{1}{4} T_C$. Die unbezeichnete obere Kurve gibt die Sättigungsmagnetisierung für die ke. (001)-Schicht wieder.

die Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung bezogen auf die des kompakten Materials (M_∞) bei $T/T_C = \frac{1}{4}$ entnommen und in Abb. 4 wiedergegeben. Zum Vergleich ist die entsprechende Kurve aus der (001)-Schicht eingezeichnet und außerdem die der anschließend behandelten kubisch-raumzentrierten Schicht.

II. Die kubisch-raumzentrierte (001)-Schicht

Jedes Randatom hat hier im Vergleich zu Innenatomen nur vier statt acht nächste Nachbarn. Zu einer Lösung von (3) kommen wir wieder durch den Ansatz (5). Die Überlegungen sind die gleichen wie im vorhergehenden Abschnitt. In der folgenden Zusammenstellung der Ergebnisse ist nur unter β die etwas geänderte Abkürzung $\beta = 2\pi/(D\sqrt{\Theta})$ zu verstehen.

a) $n_z = n - 1 = 1, 2, \dots, D - 2$,

$$a = \sqrt{\frac{2}{N}} \exp \{i(k_x x + k_y y)\} \begin{cases} \sin k_z z & \text{für gerades } n_z, \\ \cos k_z z & \text{für ungerades } n_z, \end{cases}$$

$$\varepsilon = 2 \mu_B H + J(k_x^2 + k_y^2 + (2\pi/D)^2 n^2); \quad (31 \text{ a})$$

b) $n_z = 0$,

$$a = \sqrt{\frac{2}{N}} \exp \{i(k_x x + k_y y)\} \cdot \begin{cases} \sin k_z z, & \text{solange } \cos(k_x/2) \cos(k_y/2) \leq (D-1)/(D+1), \\ \sinh \sigma z, & \text{solange } \cos(k_x/2) \cos(k_y/2) \geq (D-1)/(D+1), \end{cases}$$

$$\varepsilon = 2 \mu_B H + J[A^2(k_x^2 + k_y^2) + (2\pi/D)^2]; \quad (31 \text{ b})$$

c) $n_z = D - 1$,

$$a = \sqrt{1/N} \exp \{i(k_x x + k_y y)\} \cosh \sigma z,$$

$$\varepsilon = 2 \mu_B H + J B^2 (k_x^2 + k_y^2), \quad (31 \text{ c})$$

$$\frac{M_0 - M}{M_0} = \begin{cases} \frac{\Theta}{2\pi D} \left[\frac{1}{A^2} e^{-\beta^2} - \frac{1}{B^2} \ln \gamma \right] & \text{für } \beta \gg 1, \\ \frac{\zeta(\frac{3}{2})}{8\sqrt{\pi^3}} \Theta^{3/2} - \frac{\Theta}{2\pi D} \left[\ln \sqrt{\Theta} D + \frac{1-A^2}{A^2} \ln(1-e^{-\beta^2}) + \frac{\ln \gamma}{B^2} \right] & \text{für } \beta \ll 1. \end{cases} \quad (32)$$

Die Kurven sind in Abb. 5 wiedergegeben. Dabei wurde eine solche Feldstärke zugrunde gelegt, daß der Wert $\gamma = 4 \cdot 10^{-6}/\Theta$ beibehalten werden konnte. Der Zusammenhang von T/T_C mit Θ ist nach RUSHBROOKE und Wood für das kubisch-raumzentrierte Gitter und $S = \frac{1}{2}$

$$\Theta = 2,6(T/T_C). \quad (33)$$

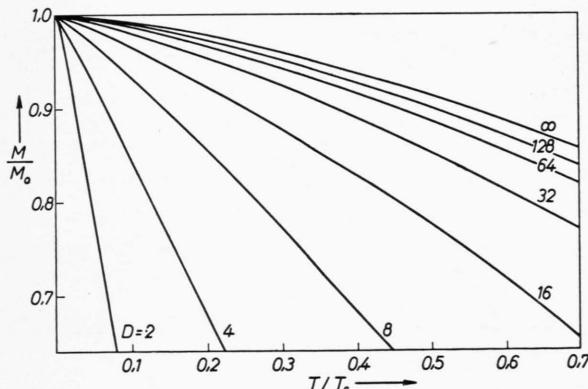


Abb. 5. Die Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung von der Temperatur bei kubisch-raumzentrierten (001)-Schichten.

Die einlagige Schicht wurde weder im kubisch-einfachen noch im kubisch-raumzentrierten Gitter betrachtet. Im einen Fall hätten wir ein Zerfallen der Schicht in lineare Ketten vorliegen, im anderen sind innerhalb der Schicht überhaupt keine Atome mehr durch die Austauschkräfte gekoppelt, da sie

untereinander nicht zum Ring nächster Nachbarn gehören.

Zur Abb. 4 ist noch zu bemerken, daß der Einschluß des Wertes $D = 2$ den Rahmen unserer Rechnung überschreitet, da die Spinwellentheorie ihrem Ansatz nach nur das Gebiet kleiner Abweichungen der Magnetisierung aus der absoluten Sättigung beschreiben kann. Die Kurven können aber vielleicht den qualitativen Schluß zulassen, daß bei der gewählten Temperatur die zweidimensionalen Schichten der hier behandelten Gitter im Gegensatz zum Flächengitter, das DÖRING¹² seiner Rechnung zugrunde legte, keinen Ferromagnetismus zeigten.

III. Die lokale Magnetisierung innerhalb einfach-kubischer Gitter

Wenn man von der Voraussetzung ausgeht, daß in einem in allen Richtungen weit ausgedehnten Ferromagnetikum ohne Oberflächenanisotropie die Magnetisierung an den Begrenzungsf lächen eine verschwindende Normalableitung hat, so folgt sofort, daß die Abweichung der spontanen Magnetisierung vom Wert M_0 bei $T = 0$ an der Oberfläche doppelt so groß ist wie im Innern.

RADO¹³ erhielt als Ergebnis

$$\frac{M_0 - M(z)}{M_0 - M} = 1 + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\exp \{-\Theta z^2/n\}}{n^{3/2}} [\zeta(\frac{3}{2})]^{-1/2} \quad (34)$$

$M(z)$ ist dabei die Magnetisierung in der Tiefe z

unter einer Oberfläche. Diese Überlegung ist sicher nicht mehr richtig, wenn die Wellenlänge der wesentlich angeregten Spinwellen von der Größenordnung der Schichtdicke ist.

Es soll zunächst die ke.(001)-Schicht behandelt werden. Hier haben die Spinwellen nach DÖRING¹¹ die Form

$$a = \begin{cases} \sqrt{\frac{1}{N}} \exp \{i(k_x x + k_y y)\} & \text{für } n_z = 0 \\ \sqrt{\frac{2}{N}} \exp \{i(k_x x + k_y y)\} \cos k_z z & \text{für } n_z = 1, 2, \dots, D-1. \end{cases} \quad (35)$$

Dann erhält man mit den üblichen Abkürzungen und $\beta = \pi / (D \sqrt{\Theta})$

$$\frac{M_0 - M(z)}{M_0} = \frac{2}{N} \sum_{n_x, n_y} \left[\sum_{n_z=1}^{D-1} \frac{2 \cos^2(n_z z \pi / D)}{\exp \{\gamma + \alpha^2(n_x^2 + n_y^2) + \beta^2 n_z^2\} - 1} + \frac{1}{\exp \{\gamma + \alpha^2(n_x^2 + n_y^2)\} - 1} \right].$$

Die Summation über n_x und n_y lässt sich wieder durch eine Integration ersetzen. Mit $\gamma \ll 1$ und $\beta^2 \gg \gamma$ erhält man schließlich, bezogen auf den Mittelwert über die Schicht,

$$\frac{M_0 - M(z)}{M_0 - M} = \frac{\frac{2}{\sum_{n_z=1}^{D-1} \ln(1 - \exp(-\beta^2 n_z^2)) + \ln \gamma}{\sum_{n_z=1}^{D-1} \cos^2(n_z z \pi / D) \ln(1 - \exp(-\beta^2 n_z^2)) + \ln \gamma}}. \quad (36)$$

In der Nähe der Oberfläche ($z/D \ll 1$) und der Mitte der Schicht lässt sich (36) nach Potenzen von z/D entwickeln und in dieser Form näherungsweise summieren. Das gibt in erster Näherung eine quadratische Abhängigkeit von z . Um den Verlauf in allen Schichtebenen zu erfassen, wurde die Summation für eine Reihe von z -Werten numerisch durchgeführt. Die Parameter wurden wie bisher gewählt, also $T/T_C = \frac{1}{4}$, d. h. $\Theta = 0,425$ und $\gamma = 9,4 \cdot 10^{-6}$. Die Ergebnisse sind in Abb. 6 aufgetragen. Zum Vergleich ist die Radosche Kurve für die „unendlich dicke Schicht“ eingezeichnet. Dabei wurden die Kurven außer für $D=64$ und ∞ bis zur Schichtmitte aufgetragen.

Der Charakter der Radoschen Kurven bleibt erhalten. Allerdings ist der Abfall der Magnetisierung zum Wert an der Oberfläche mit abnehmender Schichtdicke immer weniger schroff. Der Mittelwert wird für $D=64$ bei etwa $1/8$ der Schichtdicke erreicht, für $D=4$ erst bei $1/4$. Das hängt natürlich damit zusammen, daß bei den dünnen Schichten nur Spinwellen mit den ersten k_z -Werten angeregt sind. Erst bei dickeren Schichten sind genügend Wellen vorhanden, deren Überlagerung eine stärkere Annäherung an den Mittelwert ermöglicht.

Es ist aufschlußreich, die Verhältnisse für $z=0$ und $z=D/2$ noch genauer zu untersuchen. Hier können wir die Summation über n_z für $\beta \ll 1$ nach der

EULER-MACLAURINSchen Summenformel durchführen. Wir erhalten

$$\frac{M_0 - M(0)}{M_0 - M} = 2 + \frac{M_0}{M_0 - M} \frac{\Theta}{2 \pi D} \ln \gamma \quad (37a)$$

$$\text{und } \frac{M_0 - M(D/2)}{M_0 - M} = 1 - \frac{M_0}{M_0 - M} \frac{\Theta}{2 \pi D} \ln \frac{D \sqrt{\Theta}}{2}. \quad (37b)$$

An der Oberfläche ist also besonders stark der Einfluß des Summanden zu $n_z = 0$ zu spüren, während im Innern die Abweichung vom Mittelwert vor allem auf die Berücksichtigung der diskreten Lage der k_z -Werte bei der Summation im f-Raum zurückzuführen ist. Wie aus Abb. 6 hervorgeht, gibt es für $(M_0 - M(z)) / (M_0 - M)$ ein schwaches Minimum, das etwa für die D -Werte zwischen 16 und 32 angenommen wird.

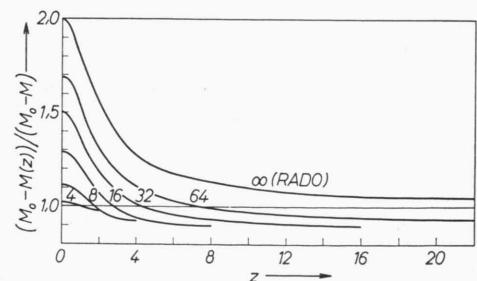


Abb. 6. Die Abweichung der lokalen Magnetisierung bei $T = \frac{1}{4} T_C$ von der Sättigungsmagnetisierung längs der Normalen zur Oberfläche für verschiedene einfach-kubische (001)-Schichten.

Die entsprechende Rechnung für die ke.(101)-Schicht ergibt mit den Hilfsmitteln des I. Abschnittes

$$\frac{M_0 - M(\nu)}{M_0 - M} = \frac{2 \sum_{n=2}^{D-1} \cos^2 \frac{\pi \nu}{D} n \ln(1 - e^{-\beta^2 n^2}) + \frac{2}{A} \cos^2 \frac{\pi \nu}{D} \ln(1 - e^{-\beta^2}) + \frac{\ln \gamma}{B}}{\sum_{n=2}^{D-1} \ln(1 - e^{-\beta^2 n^2}) + \frac{1}{A} \ln(1 - e^{-\beta^2}) + \frac{\ln \gamma}{B}}. \quad (38)$$

Die numerische Auswertung führt zur Abb. 7. An der Oberfläche und in der Mitte der Schicht erhält man

$$\frac{M_0 - M(0)}{M_0 - M} = 2 + \frac{M_0}{M_0 - M} \frac{\Theta}{\sqrt{2} \pi D} \frac{\ln \gamma}{B}, \quad \frac{M_0 - M(\frac{1}{2} D - 1)}{M_0 - M} = 1 - \frac{M_0}{M_0 - M} \frac{\Theta}{\sqrt{2} \pi D} \ln \frac{D \sqrt{\Theta}}{2 \sqrt{2}}. \quad (39 \text{ a, b})$$

Den Unterschied zum (001)-Fall erkennt man besonders gut am Oberflächeneffekt. Hier tritt neben dem anderen $(M_0 - M)/M_0$ -Wert und der Verschiebung $\sqrt{2} D$ statt $2 D$ in der Konstanten B deutlich die Oberflächenwelle in Erscheinung und bedingt, da $B < 1$ ist, ein stärkeres Abweichen vom Wert des Blockmaterials.

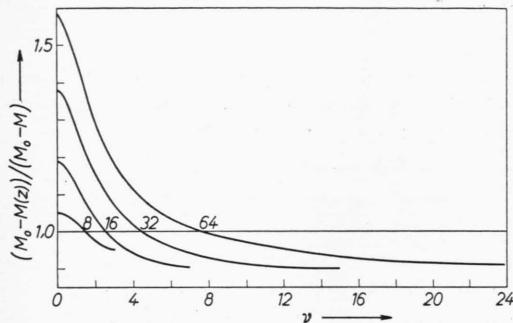


Abb. 7. Die zu Abb. 6 analogen Kurven für (101)-Schichten.

IV. Diskussion

Wegen der deutlichen Abhängigkeit der spontanen Magnetisierung von der Oberflächenlage ist es ohne deren Kenntnis nicht möglich, die bisher vorliegenden Meßergebnisse mit den theoretischen Erwartungen zu vergleichen, selbst wenn ein Auseinanderreißen der Schicht und Oberflächenoxydation vermieden wurden. Die jüngsten Experimente

von MEYER und STÜNKEL¹⁶ an Eisenschichten im Ultrahochvakuum zeigen einen Abfall der Sättigungsmagnetisierung von dem Wert des Blockmaterials bei etwa $D = 25$ ($T = \frac{1}{4} T_C$), der allerdings steiler verläuft als die kr.(001)-Kurve der Abb. 4.

Auf jeden Fall stehen diese Ergebnisse qualitativ besser mit den Resultaten der Spinwellentheorie als mit denen der VALENTASchen Methode in Übereinstimmung. Die experimentelle Untersuchung der lokalen Sättigungsmagnetisierung in einem Ferromagnetikum scheint noch nicht möglich zu sein. Es bleibt abzuwarten, wann die wachsende technische Beherrschung der Herstellungs- und Untersuchungsmethoden auch auf diese Frage eine Antwort gibt.

Die Anregung zu dieser Arbeit und ihre stete Förderung verdanke ich Herrn Prof. W. DÖRING. Wesentliche Teile dieser Untersuchungen konnten während eines Aufenthaltes im IBM-Forschungslaboratorium in Adliswil/Zürich durchgeführt werden, wofür ich sehr zu Dank verpflichtet bin.

¹⁶ H. MEYER u. D. STÜNKEL, Naturwiss. 12, 277 [1962].