

Monte Carlo Study of Magnetic Nanostructures During Growth

Magnetic Ordering and Slow Nonequilibrium Dynamics

Im Fachbereich Physik
der
Freien Universität Berlin
eingereichte
Dissertation

vorgelegt von
Roman Brinzanik

2003

electronic version: <http://www.diss.fu-berlin.de>

Erster Gutachter: Prof. Dr. K. H. Bennemann
Institut für Theoretische Physik
Freie Universität Berlin
Arnimallee 14, 14195 Berlin

Zweiter Gutachter: Prof. Dr. P. Fumagalli
Institut für Experimentalphysik
Freie Universität Berlin
Arnimallee 14, 14195 Berlin

Tag der Disputation: 11.07.2003

mojej mame

Zusammenfassung

In dieser Arbeit werden magnetische Gleichgewichts- und Nichtgleichgewichtseigenschaften von lateral nanostrukturierten Filmen während des Wachstums theoretisch untersucht. Speziell befasst sich die Arbeit mit irregulären Ensembles von magnetischen Inseln bei niedrigen Filmbedeckungen und dem Übergang zu einem glatten Film. Für solche ultradünnen Filme werden die magnetische Fernordnung, die magnetische Relaxation auf einer langen Zeitskala und die metastabile Domänenstruktur berechnet.

Wir verwenden folgende Methoden: Das Wachstum ultradünner Filme wird mittels eines phänomenologischen Modells beschrieben, wobei deponierte Atome an bereits bestehende Inseln angelagert werden. Simulationen dieses einfachen Modells ergeben realistische atomare Morphologien. Zur Beschreibung der magnetischen Eigenschaften stellen wir ein mikromagnetisches Modell auf, dessen zentrale physikalische Idee es ist, einen nanostrukturierten Film als ein Ensemble von wechselwirkenden, magnetischen Inseln zu behandeln. Hierbei berücksichtigen wir eine lokale, uniaxiale Anisotropie, langreichweitige Dipol- und kurzreichweitige Austauschwechselwirkungen zwischen den Inseln. Die thermodynamischen Erwartungswerte der Filmmagnetisierung im Gleichgewicht und Nichtgleichgewicht werden mittels Gleichgewichts- und kinetischen Monte-Carlo-Simulationen berechnet. Hierfür entwickeln wir eine neue Cluster-Monte-Carlo-Methode, die kohärente Magnetisierungs-Flips von verbundenen Inseln berücksichtigt. Diese Erweiterung ermöglicht Berechnungen der magnetischen Eigenschaften im gesamten Bedeckungsbereich – unterhalb und oberhalb der Perkolationsschwelle – im Rahmen des gleichen Modells. Unter Verwendung von magnetischen Parametern von $3d$ -Übergangsmetall-Filmen wenden wir unsere Methode auf ein wachsendes Modellsystem an und erhalten folgende Hauptergebnisse:

Betrachten wir zunächst Filmbedeckungen Θ unterhalb der Perkolationsschwelle Θ_p . In diesem Bereich verursacht die Dipolkopplung zwischen *in-plane* magnetisierten Inseln einen kollektiv geordneten Zustand mit endlicher Gesamt magnetisierung. Für die verwendeten Modellparameter erhalten wir Ordnungstemperaturen T_C von 1 – 10 K. Ein Vergleich mit Ergebnissen einer einfachen Molekularfeldnäherung zeigt, dass thermische Fluktuationen

nen in dipolgekoppelten, zweidimensionalen Systemen ausgeprägt sind. Bei wachsender Bedeckung beobachten wir in der Nähe der Perkolationsschwelle einen starken Anstieg der Ordnungstemperatur aufgrund von einsetzenden Austauschkopplungen zwischen den Inseln.

Bei Bedeckungen $\Theta < \Theta_P$ und niedrigen Temperaturen verursachen Anisotropiebarrieren eine langsame magnetische Relaxation aus einem Zustand mit parallel ausgerichteten Inselmagnetisierungen in das thermodynamische Gleichgewicht, etwa nach Ausschalten eines sättigenden Magnetfeldes. Unter Annahme einer Wartezeit von ~ 100 sec finden wir *blocking*-Temperaturen T_b von der Größenordnung $10 - 100$ K, unterhalb derer sich die Filmmagnetisierung im Nichtgleichgewicht befindet. Bei einer Annäherung an die Perkolationsschwelle Θ_P beobachten wir, dass ein Stoner-Wohlfarth-Modell für verbundene Inseln, das ausschließlich kohärente Magnetisierungsrotationen berücksichtigt, nicht mehr gültig ist. Hier erfolgt die Relaxation zunehmend über Anregungen innerhalb von Insel-Clustern.

Wir beobachten einen interessanten Effekt der Dipolkopplung auf das magnetische Relaxationsverhalten. Für *in-plane* magnetisierte Systeme verlangsamt die Dipolkopplung die Relaxation und erhöht die *blocking*-Temperatur T_b . Im Gegensatz dazu führt die Dipolkopplung bei einer *out-of-plane* Magnetisierung zu einer beschleunigten Relaxation und einer niedrigeren *blocking*-Temperatur. Diese Effekte sind auch bei Temperaturen zu beobachten, die viel höher sind als die durch die Dipolkopplung verursachten Ordnungstemperaturen T_C .

Für Filmbedeckungen oberhalb der Perkolationsschwelle Θ_P entsteht aufgrund von starken Austauschkopplungen eine ferromagnetische Fernordnung bei Temperaturen unterhalb von $100 - 300$ K, abhängig von der Stärke der Vernetzung des Systems. Deutliche Nichtgleichgewichts-Effekte aufgrund von Anisotropiebarrieren erhalten wir in der Nähe der Perkolationsschwelle. Bei einer steigenden Bedeckung erfolgt die Relaxation der Filmmagnetisierung aus dem vollständig gesättigten in den ferromagnetischen Zustand mit thermischen Anregungen aufgrund der wachsenden Stärke der Austauschkopplung zwischen den Inseln schneller. Entsprechend geht die *blocking*-Temperatur T_b bei wachsender Bedeckung in die Ordnungstemperatur T_C über, so dass sich die Filmmagnetisierung nach ~ 100 sec immer im Gleichgewicht befindet.

Während des Wachstums finden wir in der Nähe der Perkolationsschwelle Θ_P eine metastabile, magnetische Domänenstruktur mit Domänen, die größer sind als isolierte, eindomänige Inseln und kleiner als die großen Gleichgewichts-Domänen, die für glatte Filme beobachtet werden. Diese Mikro-Domänenstruktur wird durch Austauschkopplungen verursacht, die aufgrund der irregulär verbundenen Nanostruktur nicht uniform sind. Das irreguläre Filmsystem stellt somit einen ‘random ferromagnet’ dar, für den viele meta-

stabile, kollektive Zustände existieren, die durch hohe Energiebarrieren getrennt werden. Wir erhalten ein Maximum der mittleren Größe und ein Minimum der mittleren Rauigkeit der Domänen als Funktionen der Temperatur während des Wachstums.

Schließlich sei angemerkt, dass mit unserer Methode auch andere lateral nanostrukturierte Systeme, wie zum Beispiel aus isolierten Inseln bestehende Kettenanordnungen und der Übergang zu eindimensionalen Streifen, untersucht werden können.

Abstract

This thesis is concerned with the theoretical investigation of both nonequilibrium and equilibrium magnetic properties of laterally nanostructured films during growth. Irregular arrays of separated magnetic islands at low film coverages and the transition to smooth films at high coverages are examined. For such ultrathin films, the long-range magnetic order, the magnetic relaxation on a long time scale, and the metastable domain structure are calculated.

We use following methods: The ultrathin film growth is described by use of a phenomenological growth model where adatoms are attached to already existing islands. Simulations of this simple model result in realistic atomic morphologies. We formulate a micromagnetic model for the description of the magnetic properties of such structures. The basic physical idea of this approach is to treat a nanostructured film as an ensemble of interacting magnetic islands. A single-island uniaxial anisotropy, long-range inter-island dipole couplings, and short-range exchange interactions between islands are taken into account. The thermodynamic expectation values of the film magnetization in equilibrium and nonequilibrium are calculated by use of equilibrium and kinetic Monte Carlo simulations. For this purpose, we develop a new cluster Monte Carlo method which considers coherent magnetization flips of connected islands. This extension enables calculations of the magnetic properties in the entire coverage range – below and above the percolation threshold – within the same model. By use of typical magnetic parameters of $3d$ -transition metal films, we apply our approach to a growing model system and obtain the following main results:

First, we look at film coverages Θ below the percolation threshold Θ_P . In this coverage range, the dipole interaction between in-plane magnetized islands causes a collectively ordered state with finite overall magnetization. We yield ordering temperatures T_C of 1 – 10 K for the assumed model parameters. A comparison with results of a simple mean-field theory demonstrates the importance of thermal fluctuations in dipole-coupled, two-dimensional systems. For an increasing coverage, we observe a strong increase of the ordering temperature near the percolation threshold due to starting inter-island exchange couplings.

For coverages $\Theta < \Theta_P$ and low temperatures, single-island anisotropy barriers cause a slow magnetic relaxation from a state with parallelly aligned island magnetizations, e. g. after switching off a saturating magnetic field. Assuming a waiting time of ~ 100 sec, we obtain blocking temperatures T_b of the order 10 – 100 K below which the film magnetization is found in nonequilibrium. Approaching the percolation threshold Θ_P , the Stoner-Wohlfarth model for connected islands which exclusively considers coherent magnetization rotations of connected islands is no longer valid. Here, the magnetic relaxation happens more and more via excitations within island clusters.

We observe an interesting effect of the dipole coupling on the magnetic relaxation behavior. For in-plane magnetized systems, the dipole coupling slows down the relaxation and increases the blocking temperature T_b . In contrast, for an out-of-plane magnetization, the dipole coupling accelerates the magnetic relaxation and reduces the blocking temperature. These effects are also observed at temperatures much higher than the ordering temperatures T_C caused by the dipole coupling.

For film coverages above the percolation threshold Θ_P , the strong exchange coupling leads to a long-range ferromagnetic order at temperatures below 100 – 300 K, depending on the connectivity of the system. We obtain pronounced nonequilibrium effects due to anisotropy barriers in vicinity of the percolation threshold. For an increasing coverage, a fast relaxation of the film magnetization from the completely saturated state into the ferromagnetic state with thermal excitations is obtained due to the increasing strength of the inter-island exchange coupling. Consequently, for an increasing coverage, the blocking temperature T_b passes into the ordering temperature T_C . Thus, after ~ 100 sec, the film magnetization is always found in equilibrium.

We find an interesting metastable, ‘as-grown’ magnetic domain structure near the percolation threshold with domains, larger than isolated, single-domain islands and smaller than the huge equilibrium domains observed for smooth films. This micro-domain structure is caused by inter-island exchange couplings which are random, due to the irregularly connected nanostructure. Thus, the irregular film system represents a ‘random ferromagnet’ with a lot of metastable collective states separated by high energy barriers. We obtain a maximum of the average domain area and a minimum of the average domain roughness as functions of the temperature during growth.

Finally, we note that our approach can also be applied to investigations of completely different laterally nanostructured systems, such as chains of separated islands and the transition to one-dimensional stripes.

Contents

Zusammenfassung	5
Abstract	9
1 Introduction	13
1.1 Magnetic nanostructures	13
1.2 Magnetic ordering and slow relaxation	14
1.3 ‘As-grown’ magnetic domain structure	18
1.4 Theoretical approach and organization of the thesis	21
2 Growth Model	23
2.1 Extended Eden model of island growth	23
2.2 Resulting nanostructured films	26
2.2.1 Different growth modes	26
2.2.2 Bilayer island growth	29
2.2.3 Percolation threshold	31
3 Magnetic Model	37
3.1 Magnetic interactions	37
3.2 Single-domain magnetic islands	40
3.2.1 Magnetization reversal of an island	41
3.2.2 Noninteracting island ensembles	43
3.3 Micromagnetic model of nanostructured films	45
3.4 Island magnetization flips in the effective field	47
3.4.1 Angular-dependent magnetic energy of an island	48
3.4.2 Rates of single-island magnetization flips	50
3.4.3 Rates of island-cluster magnetization flips	51
4 Monte Carlo Simulation	53
4.1 Monte Carlo method	53
4.1.1 Equilibrium MC method for long-range order	54
4.1.2 Kinetic MC method for relaxation process	56
4.2 Monte Carlo algorithms	57

4.2.1	Single-spin-flip algorithm	57
4.2.2	Cluster-spin-flip algorithm	58
4.3	Accuracy of the Monte Carlo method	60
5	Results	61
5.1	Calculated quantities and parameters	62
5.2	Test of the cluster Monte Carlo method	64
5.3	Long-range magnetic order	69
5.3.1	Coverages below the percolation threshold	69
5.3.2	Coverages above the percolation threshold	72
5.3.3	Comparison with MFT results	76
5.4	Magnetic relaxation	78
5.4.1	Coverages below the percolation threshold	79
5.4.2	Effect of the dipole interaction	84
5.4.3	Coverages above the percolation threshold	89
5.4.4	Summary of the magnetization study	91
5.5	Metastable magnetic domain structure	94
5.5.1	Snapshots of domain structures	95
5.5.2	Analysis of the average domain area	97
5.5.3	Analysis of the average domain roughness	102
5.5.4	Role of nonuniform inter-island couplings	104
6	Summary and Outlook	107
A	Theories of thin film growth	111
B	Simulation of a growing fcc-(001) film	117
C	Hoshen-Kopelman algorithm	121
D	Magnetization reversal of a single-domain particle	123
D.1	Reversal due to an external magnetic field	123
D.2	Thermally activated reversal over an energy barrier	124
E	Ewald summation of the dipole term	127
F	Mean-field theory of magnetic order	133
F.1	Internal island magnetic order	133
F.2	Long-range magnetic order	136
	Bibliography	139