

Ферромагнитный резонанс и магнитная микроструктура в пленках нанокompозитов $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$, $(\text{CoFeB})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$

© Р.С. Исхаков^{1,2}, Е.А. Денисова¹, С.В. Комогорцев^{1,2}, Л.А. Чеканова^{1,3}, Ю.Е. Калинин⁴, А.В. Ситников⁴

¹ Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН,
Красноярск, Россия

² Сибирский государственный технологический университет,
Красноярск, Россия

³ Сибирский федеральный университет,
Красноярск, Россия

⁴ Воронежский технический университет,
Воронеж, Россия

E-mail: rauf@iph.krasn.ru

Представлены результаты исследования взаимосвязи магнитной микроструктуры и ферромагнитного резонанса (ФМР) в нанокompозитах ферромагнитный металл–диэлектрик на примере гранулированных сплавов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$, $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$. Сравнительный анализ характеристик спектров ФМР и параметров случайной магнитной анизотропии позволил установить корреляции между этими величинами. Установлено, что основным механизмом, определяющим величину ширины линии ФМР в исследуемых пленках, является механизм обменного сужения.

Работа выполнена при поддержке целевой программы „Развитие научного потенциала высшей школы“ (гранты РНП.2.1.1/2584, РНП 2.1.1/3498), а также РФФИ (грант № 09-02-98002 р_сибирь_a).

1. Введение

Гранулированные структуры, содержащие ферромагнитные наночастицы в „немагнитной матрице“, обладают рядом свойств, которые позволяют рассматривать их как перспективные материалы для создания новых приборов микроэлектроники. В этих материалах был обнаружен целый ряд интересных физических эффектов: гигантское магнитосопротивление, гигантский аномальный эффект Холла, усиление магнитооптических эффектов и т.д. Перечисленные эффекты во многом обусловлены особенностями микромагнитной структуры этих материалов.

Микроструктура таких нанокompозитов во многом определяется легкостью формирования наногранул $3d$ -металлов в диэлектрической матрице оксида SiO_2 . Так как поверхностная энергия $3d$ -металлов в несколько раз превышает поверхностную энергию SiO_2 , морфология гранул металла близка к сферической форме в матрице оксида. В частности, такая форма гранул реализуется при малой концентрации металлической фазы. Численное моделирование предсказывает в зависимости от объемной доли гранул металла три морфологических типа двухфазной смеси. При объемной доле металла ниже 0.3 преобладают изолированные частицы металла, хаотически распределенные по диэлектрической матрице. При объемной доле от 0.3 до 0.7 обе фазы (металлическая и диэлектрическая) формируют связанные сетки. При объемных долях металла выше 0.7 происходит инверсия фазовой микроструктуры: гранулы металла формируют проводящую матрицу, а диэлектрик представлен изолированными частицами.

При условии сильного обменного взаимодействия между наночастицами композита связь макроскопических магнитных параметров (таких как восприимчивость, коэрцитивное поле, ширина линии ферромагнитного резонанса (ФМР) и т.д.) с микроскопическими параметрами спиновой системы, такими как размер наночастицы (зерна), межзеренное (и внутриверенное) обменное взаимодействие, локальная анизотропия, описывается так называемой моделью случайной анизотропии [1–4], предложенной для аморфных ферромагнетиков. Случайная анизотропия приводит к разрушению ферромагнитного дальнего порядка в спиновой системе, но благодаря обменному взаимодействию на характерных длинах магнитной ориентационной когерентности R_L ферромагнитный порядок сохраняется. Исследования показали, что микроскопические магнитные характеристики наномгнетиков обусловлены размером ($2R_L$) и анизотропией стохастических доменов, самопроизвольно образованными большим количеством частиц (размером $2R_C$).

В настоящей работе представлены результаты исследования взаимосвязи магнитной микроструктуры и основных параметров ФМР в нанокompозитах ферромагнитный металл–диэлектрик на примере нанокompозитных пленок $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$, $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$.

2. Образцы и методы исследования

Исследуемые нанокompозиты представляют собой сложную систему, состоящую из наногранул аморфного сплава $\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20}$ или кристаллического Co , расположенных случайным образом в диэлектрической матрице, с объемным содержанием металлического компо-

нента 0.3–0.7. Нанокompозиты $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ и $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ были получены ионно-лучевым распылением составных мишеней в атмосфере аргона на специально сконструированной в Воронежском государственном техническом университете установке. Толщина полученных пленок составляла 3–4 μm . Структура нанокompозитов исследовалась с помощью просвечивающей электронной микроскопии, состав контролировали электронно-зондовым рентгеноспектральным микроанализом [5]. Измерения низкотемпературных и полевых зависимостей намагниченности $M(T, H)$ выполнялись на вибрационном магнитометре во внешних полях до 14 кОе в диапазоне температур 90–300 К. Резонансные характеристики измерялись на стандартном спектрометре ЭПА-2М (частота 9.2 GHz).

В работе использована методика, позволяющая из кривых приближения намагниченности к насыщению в наноматериалах определять размер элемента их микромагнитной структуры (размер стохастического домена), величину эффективной анизотропии в этой области и величину элемента наноструктуры (размер наночастиц) и ее локальную анизотропию, а также пространственную размерность системы обменно-связанных ферромагнитных наночастиц [6]. Сравнительный анализ характеристик спектров ФМР и параметров случайной магнитной анизотропии позволил установить корреляции между этими величинами.

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

Исследования низкотемпературного хода намагниченности насыщения пленок показали, что кривые $M(T)$ для всех нанокompозитов в выбранном диапазоне концентраций ($0.3 < x \leq 0.7$) хорошо описываются законом Блоха $\Delta M(T)/M_s = B \cdot T^{3/2}$ и не содержат особенностей, характерных для суперпарамагнитных частиц. Концентрационные зависимости константы Блоха B обеих серий образцов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ и $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ качественно подобны. Значение B уменьшается при увеличении содержания металлической фазы от $23 \cdot 10^{-6}$ до $6 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-3/2}$. С помощью стандартных выражений [7] из величины B была вычислена константа обменного взаимодействия A . Полученные значения величины A для исследуемых нанокompозитов представлены на рис. 1.

Кривые намагничивания измерялись в полях до 12 кОе и строились в двойных логарифмических координатах $((M_s - M)/M_s, H)$, позволяющих выявлять степенные зависимости $\Delta M \sim H^{-\alpha}$ и определять показатели и тангенсы этих зависимостей. Кривые приближения намагниченности к насыщению в обеих сериях нанокompозитных пленок для всех значений x характеризуются акуловской зависимостью $M(H) \sim (H)^{-2}$ в полях больше 3–6 кОе, что позволило нам вычислить

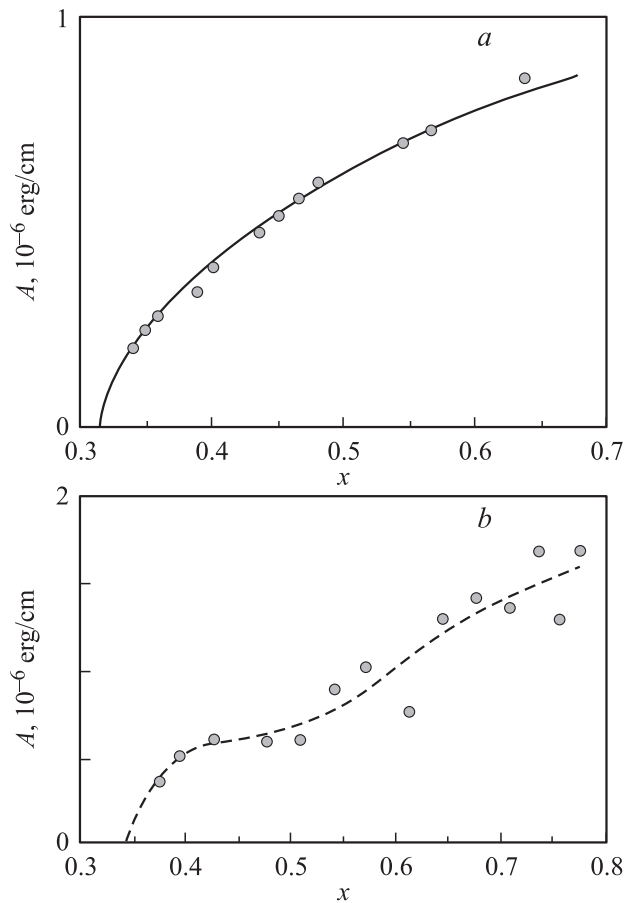


Рис. 1. Константа обменного взаимодействия в композиционных пленках $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ (a) и $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ (b).

для этих сплавов величину среднеквадратичной флуктуации поля локальной магнитной анизотропии aH_a ($H_a = 2K/M_s$ — поле локальной магнитной анизотропии, коэффициент a — симметричный числовой коэффициент, для одноосной анизотропии равный $a = 1/15^{1/2}$). Величина H_a уменьшается с увеличением концентрации металлической фазы. В диапазоне от 1 до 3–6 кОе приближение намагниченности к насыщению осуществляется как $M \sim H^\alpha$. Показатель степени α связан с эффективной размерностью магнитной микроструктуры в данном полевом диапазоне. Величина поля, при котором происходит смена степенных зависимостей $H_R = 2A/MR_c^2$, позволяет оценить величину корреляционного радиуса случайной анизотропии R_c . При уменьшении поля в области полей $H < H_R = 2A/MR_c^2$ функциональный вид кривой $M(H)$ меняется. Эти изменения связаны с возникновением и распространением в спиновой системе обменно-коррелированных отклонений намагниченности (в металлических пленках эти отклонения именовались как „рябь намагниченности“). В работе [8] показано, что в обменно-коррелированных системах со случайной анизотропией длина ряби $R_H = (2A/MH)^{1/2}$ ограничена снизу и сверху: $R_c \leq R_H \leq R_L$. Поэтому функциональная зависимость $M(H)$ в области полей

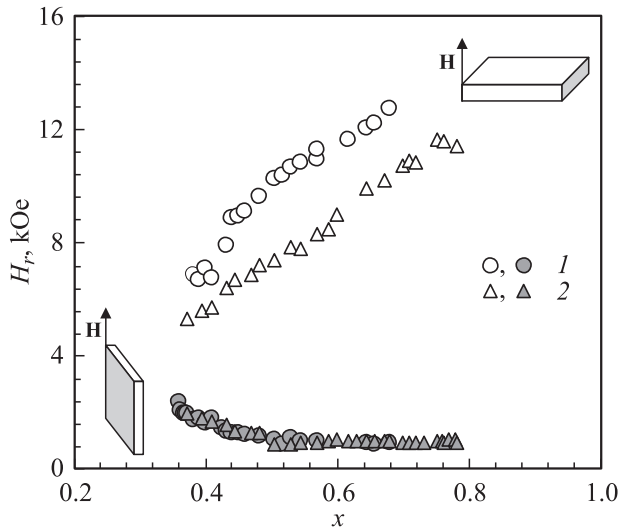


Рис. 2. Поле ферромагнитного резонанса в композиционных пленках $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ (1) и $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ (2) при различных геометриях эксперимента (светлые и темные символы).

$H_L = 2A/MR_c^2 < H < H_R = 2A/MR_c^2$ может быть определена из выражения

$$M = M_s \left(1 - \left(\frac{aH_a}{H} \right)^2 \right), \quad (1)$$

в котором локальная анизотропия частицы H_a заменена на эффективную анизотропию области, захваченной одной длиной ряби R_H ,

$$\frac{M_s - M}{M_s} = \frac{(aH_a)^2}{H_R^{d/2}} \frac{1}{H^{(4-d)/2}} = \frac{(a\langle H_a \rangle_L)^2}{H_L^{d/2}} \frac{1}{H^{(4-d)/2}},$$

$$H_L < H < H_R. \quad (2)$$

Здесь d — размерность упаковки ферромагнитных зерен, $\langle H_a \rangle_L = 2\langle K \rangle_L M_s$ — поле макроскопической анизотропии в стохастическом домене. Установлено, что величина $a\langle H_a \rangle_L$ экспоненциально растет (так же как и H_a) с уменьшением содержания металлической фазы.

Значение параметра α для обеих серий образцов изменяется в пределах 0.5–1.5, что обусловлено конфигурацией пространственной упаковки ферромагнитных зерен в нанокompозитах (значения данного показателя для различного содержания магнитной фазы в композите $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ подробно обсуждались в работе [9]).

ФМР-спектры в пленках нанокompозитов $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$, $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ изучены при различной геометрии ориентации плоскости пленки относительно внешнего поля. Концентрационные зависимости резонансных полей, измеренных в двух ортогональных проекциях, представлены на рис. 2. Эти результаты с использованием известных формул Киттеля для ФМР позволяют получить информацию об эффективной

магнитной анизотропии формы в зависимости от количества магнитной фазы. Ход $H_r(x)$ свидетельствует о монотонной трансформации эффективных размагничивающих факторов от соотношения $N_x = N_y = N_z = 4\pi/3$ (изотропная гранулированная среда) к соотношению $N_x = N_y = 0$, $N_z = 4\pi$ (сплошная металлическая матрица с диэлектрическими включениями). Спектр ФМР в параллельной геометрии может быть разложен на два-три лоренциана с разными интенсивностями, но характеризующихся одним и тем же значением H_r . В ортогональной геометрии (внешнее поле перпендикулярно плоскости пленки) при концентрациях металлической фазы до $x = 0.55$ для $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ и $x = 0.45$ для $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ наблюдается одиночная линия поглощения. При возрастании доли магнитной фазы на спектре СВЧ появляются дополнительные линии поглощения для обеих серий исследуемых образцов. Значения резонансных полей для дополнительных мод указывают на тот факт, что в данных пленках регистрируется спектр спин-волнового резонанса.

Зависимость ширины линии ФМР $\Delta H(X)$ от содержания металлической фазы (рис. 3) характеризуется отрицательным градиентом. Наибольшими величинами ΔH характеризуется изотропная гранулированная среда, наименьшими ΔH — металлическая пленка с гранулами SiO_2 . Анализ вычисляемых характеристик обменных корреляций в исследуемых нанокompозиционных пленках, а также данных по ширине линии ФМР позволил обнаружить корреляцию следующих величин: $\Delta H(X)$, $\langle H_a \rangle_L$, R_L .

Одной из идей, лежащих в основе современных попыток объяснения ширины линии ФМР в наноматериалах, является идея обменного сужения ширины ФМР [10]. Ее можно кратко выразить с помощью приближенного равенства $\Delta H(x) \approx k\langle H_a \rangle_L \approx k2A/MR_L^2$, т.е. в наноматериалах ширина линии ФМР связывается со средней

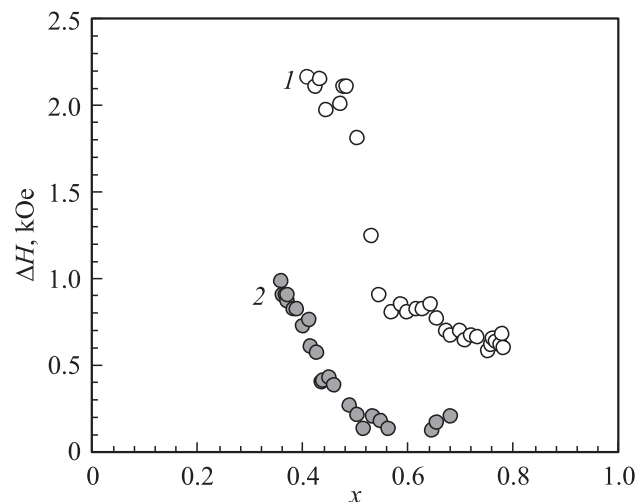


Рис. 3. Зависимость ширины линии ферромагнитного резонанса от содержания металлической фазы в наногранулированных пленках $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ (1) и $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ (2).

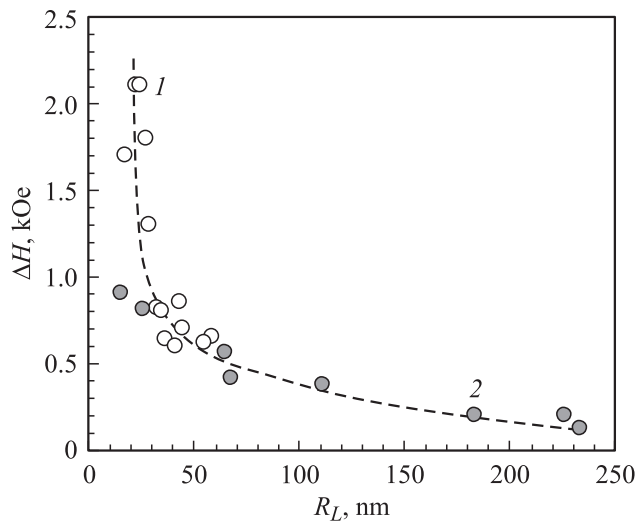


Рис. 4. Зависимость ширины линии ферромагнитного резонанса в пленках $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ (1) и $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ (2) от величины корреляционного радиуса намагниченности.

анизотропией стохастического домена, а не с локальной анизотропией зерен, как в поликристаллах. Располагая набором данных по параметрам обменных корреляций в исследуемых нанокompозиционных пленках, а также данными по ширине линии ФМР, мы получаем возможность проверить применимость этой идеи на конкретном примере.

На рис. 4 представлена экспериментальная зависимость ширины линии ФМР от величины корреляционного радиуса намагниченности (размер стохастического домена) на примере пленок $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ и $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$. Видно, что она согласуется с вычисляемой зависимостью $\Delta H(x) \sim A(x)/R_L(x)^2$ (штриховая линия). Это показывает, что основным механизмом, определяющим величину ΔH в исследуемых пленках, является механизм обменного сужения.

4. Заключение

Изучение спектров ФМР в пленках $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ и $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$, полученных в различных геометриях эксперимента, позволило выявить характерную концентрацию $x \sim 0.36$, при которой пленка может описываться состоянием изотропной гранулированной среды. При больших концентрациях возникают конгломераты металлических гранул различной морфологии вплоть до формирования сплошной магнитной пленки.

Сравнительный анализ измеренных магнитных характеристик (постоянной обменного взаимодействия, поля локальной анизотропии) и характеристик спектров ФМР нанокompозиционных пленок $(\text{Co}_{41}\text{Fe}_{39}\text{B}_{20})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ и $\text{Co}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ показал, что основным механизмом,

определяющим величину ширины линии ФМР в исследуемых пленках, является механизм обменного сужения.

Список литературы

- [1] R. Harris, M. Plischke, M.J. Zukermann. Phys. Rev. Lett. **31**, 160 (1973).
- [2] В.А. Игнатченко, Р.С. Исаков. ЖЭТФ **72**, 1005 (1977).
- [3] R. Alben, J.J. Becker, M.C. Chi. J. Appl. Phys. **49**, 1653 (1978).
- [4] E.M. Chudnovsky, W.M. Saslow, R.A. Serota. Phys. Rev. B **33**, 251 (1986).
- [5] О.В. Стогней, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников. ФММ **91**, 24 (2001).
- [6] Р.С. Исаков, С.В. Комогорцев. Изв. РАН. Сер. физ. **71**, 1661 (2007).
- [7] Р.С. Исаков, Г.В. Попов, М.М. Карпенко. ФММ **56**, 85 (1983).
- [8] С.В. Комогорцев, Р.С. Исаков. ФТТ **47**, 480 (2005).
- [9] Р.С. Исаков, С.В. Комогорцев, Е.А. Денисова, Ю.Е. Калинин, А.В. Ситников. Письма в ЖЭТФ **86**, 534 (2007).
- [10] M. Rubinstein, B.N. Das, N.C. Koon, B.D. Chrisey, J. Horwitz. Phys. Rev. B **50**, 184 (1994).