

УДК 539.143.43

© 1990

ИССЛЕДОВАНИЕ ТОНКИХ ФЕРРОМАГНИТНЫХ ПЛЕНОК НА ОСНОВЕ КОБАЛЬТА МЕТОДОМ ЯДЕРНОГО МАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА

В. С. Пожатилов, С. В. Капельницкий, В. Н. Каразеев

Методом импульсного ЯМР исследованы спектры и кинетика спада двухимпульсного (ДЭ) и стимулированного эхо (СЭ) ядер ^{59}Co в тонких магнитных пленках (ТМП) Co , $\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$, $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$, $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ и порошке $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$. Анализ зависимостей спектров спин-эхо и интенсивностей сигналов от амплитуды возбуждающих РЧ импульсов позволяет заключить, что ТМП Co и $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$ двухфазные, и определить доли каждой из фаз. Показано, что распределение сверхтонких полей удовлетворительно описывается аддитивной моделью, учитывающей вклад в наведенное сверхтонкое поле от атомов первой координационной сферы. Наблюдалось увеличение мгновенной скорости спада ДЭ при увеличении τ — интервала между импульсами при 4.2 К. Показано, что нелинейная по τ компонента спада $\ln A_{\text{эхо}}(2\tau)$ пропорциональна τ^3 для чистого Co и τ^2 для сплавов.

Для анализа ЯМР спектров ^{59}Co в ферромагнетиках применяется обычно аддитивная модель [1], которая предполагает, что сверхтонкое поле (СТП) на ядре линейно зависит от числа магнитных атомов каждого сорта в ближайших координационных сферах данного атома. Во многих случаях удастся удовлетворительно описать экспериментальные ЯМР спектры, особенно в сплавах с малым содержанием примеси [2] и в некоторых других случаях [3]. Исследования ЯМР ^{59}Co в $\text{Co}-\text{Fe}-\text{Ni}$ сплавах крайне малочисленны. Спектры ЯМР тонких магнитных пленок (ТМП) сплавов $\text{Co}_{38}\text{Fe}_{12}\text{Ni}_{50}$ и $\text{Co}_{26}\text{Fe}_{14}\text{Ni}_{60}$ измерялись в [4], однако теоретический анализ ЯМР спектров не проводился и не выяснено, применима ли аддитивная модель к распределению резонансных частот Co в пленочных образцах сложных по составу ферромагнитных сплавов.

В [5, 6] было показано, что ЯМР спектр ТМП чистого кобальта определяется фазовым составом (ГЦК и ГПУ фазы) и наличием дефектов кристаллической решетки, что в свою очередь зависит от условий напыления и термообработки. В работе [7] отмечалось, что ЯМР спектр ТМП Co зависит от уровня РЧ поля, однако зависимость формы спектра от уровня РЧ поля в этих работах не изучалась. Сравнение данных по ЯМР спектрам ТМП Co показывает, что наиболее широкие спектры наблюдаются для двухфазных пленок, однако количественный анализ вклада каждой фазы в ЯМР спектр также не проводился. Поэтому представляет интерес исследовать спектры ТМП $\text{Co}-\text{Ni}-\text{Fe}$ сплавов в рамках аддитивной модели, а также проанализировать зависимость формы ЯМР спектров Co и $\text{Co}-\text{Ni}-\text{Fe}$ пленок от уровня РЧ импульсов и для двухфазных пленок из этих зависимостей выделить вклады каждой из фаз в экспериментальный ЯМР спектр.

Другой важной проблемой в импульсном методе ЯМР в ферромагнетиках является проблема кинетики спада эха. Спад эха обычно неэкспоненциальный и его не удастся описать одним временем релаксации. В большинстве случаев в ферромагнитных массивных и пленочных образцах наблюдается уменьшение мгновенной скорости спада двухимпульсного

спинового эха (ДЭ) $1/T_2 = \partial \ln A_{\text{эхо}} / \partial 2\tau$ при увеличении τ (где τ — задержка между возбуждающими импульсами) [8-10]. Это уменьшение скорости спада ДЭ и аналогичное уменьшение скорости спада стимулированного эха (СЭ) объяснялись распределением времен поперечной T_2 и продольной T_1 релаксации. Спад эха представлялся как сумма экспоненциальных спадов эха от групп ядер с различающимися скоростями релаксации.

Однако существуют экспериментальные работы, в которых наблюдалось увеличение скорости спада ДЭ при увеличении τ . Такая зависимость $A_{\text{эхо}}(2\tau)$ спада ДЭ не может быть описана как сумма экспоненциальных спадов с каким-либо распределением времени релаксации. Такое поведение ДЭ наблюдалось в ТМП Co—Fe—Ni сплава [11] (состав не указан) и качественно интерпретировалось авторами в рамках модели [12], в которой рассматривалась электронно-ядерная релаксация, обусловленная затуханием электронной намагниченности в условиях связи электронной и ядерной подсистем. Из работы [12] следует закон спада ДЭ при $\tau < T_1$

$$A_{\text{эхо}}(2\tau) \sim \exp\left(-\frac{2\tau}{T_2}\right) \exp\left(-\frac{\Gamma_x}{2\Gamma_3} \left(\frac{\tau}{T_1}\right)^2\right), \quad (1)$$

где Γ_x — параметр электронно-ядерной релаксации; $(\Gamma_3)^{-1}$ — время обратимой разфазировки ядерных спинов за счет микроскопической неоднородности сверхтонкого поля.

Увеличение скорости спада ДЭ с ростом τ при 4.2 К наблюдалось также на ^{57}Fe в массивных образцах железа, обогащенных изотопом ^{57}Fe [9], на ^{11}B в аморфных сплавах $\text{Co}_{80}\text{B}_{20}$ [13] и $\text{Fe}_{80-x}\text{Co}_x\text{B}_{20}$ [14].

Квазигауссовская кинетика спада ДЭ (2) в аморфном сплаве $\text{Co}_{80}\text{B}_{20}$ объясняется в работе [13]. В этой работе теоретически было показано, что сул-накамуровское взаимодействие нерезонансных ядер при наличии диполь-дипольного взаимодействия с резонансными ядрами может привести к ускорению спада ДЭ с ростом τ и кинетика спада ДЭ может иметь вид

$$A_{\text{эхо}}(2\tau) \sim (1 + \frac{1}{2}(\tau/B)^2) (\exp(-\frac{1}{2}(\tau/B)^2)). \quad (2)$$

Таким образом, существующие экспериментальные и теоретические работы показывают, что доминирующий механизм релаксации и кинетика спада эха могут быть различными в различных сплавах.

Целью настоящей работы является систематическое исследование ЯМР спектров и спадов двухимпульсного и стимулированного эха и их зависимости от условий возбуждения, а также анализ кинетики спада двухимпульсного эха в тонких магнитных пленках Co и Co—Fe—Ni сплавов.

1. Образцы и методика измерений

Тонкие магнитные пленки Co, $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$, $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$, $\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$ толщиной 1000—1500 Å напылялись ионно-плазменным и электронно-лучевым методами в магнитном поле на стеклянную подложку и обладали наведенной анизотропией в плоскости пленки. Пленки были одно- и многослойными с диэлектрическими слоями из окиси кремния. Исследовался также массивный материал $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ в виде порошка $\varnothing < 80$ мкм и фольги толщиной 30 мкм. На образцах $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ в виде фольги измерялась удельная намагниченность при 290 и 77 К с точностью 0.7 %.

Спектры спинового эха $A(2\tau)$ и времена поперечной релаксации T_2 измерялись методом двухимпульсного ядерного спин-эха, времена продольной релаксации T_1 — методом стимулированного эха. Измерения проводились в нулевом внешнем поле на импульсном ЯМР спектрометре в диапазоне частот $f = 150 \div 320$ МГц при температурах 4.2, 77, 293 К. Длительность возбуждающих импульсов составляла 1 мкс, спектры и зависимости $A_{\text{эхо}}(h_1)$ (h_1 — амплитуда возбуждающих РЧ импульсов) измерялись при интервале между импульсами $\tau = 10$ мкс. Спектры ЯМР измерялись по точ-

кам с шагом 1—2 МГц. При этом поддерживались такие условия возбуждения, что $h_1 f = \text{const}$, и для однофазных пленок в соответствии с [15] распределение сверхтонких полей вычислялось по соотношению $P(H) \sim \sim A_{\text{эхо}}(f)/f^2$, где $f = 2\pi\gamma H$, $\gamma = (1/2\pi) 0.998$ МГц/кЭ — гиромагнитное отношение.

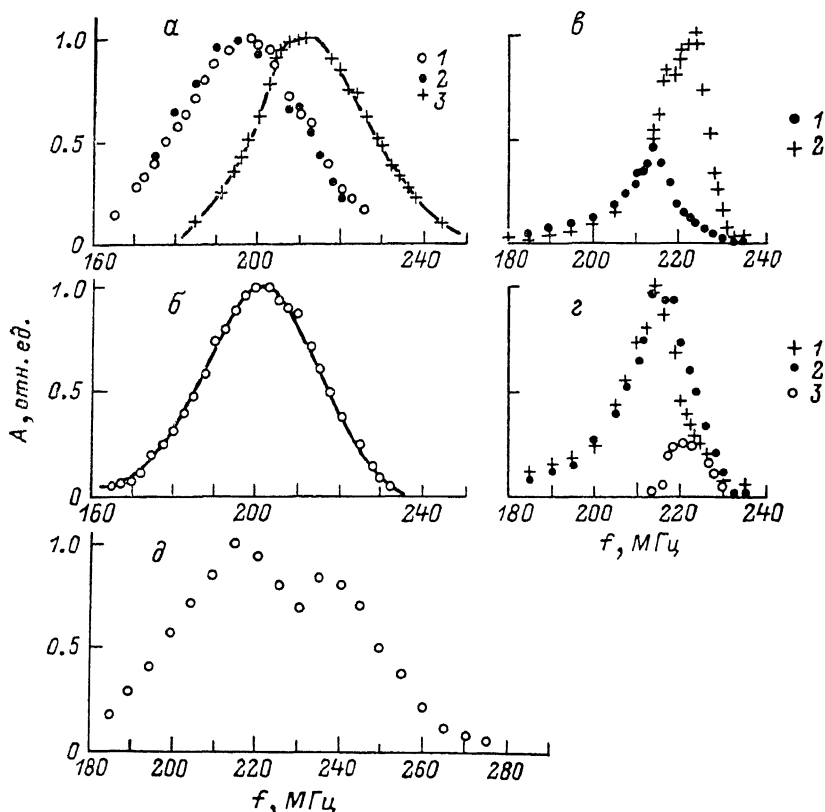


Рис. 1. Нормированные спектры ЯМР ^{59}Co $A \sim A_{\text{эхо}}/f^2$.

а: $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$. 1 — ТМП при 290 К, 2 — порошок при 290 К, 3 — ТМП при 4.2 К, линия — расчет по формуле (7) при $a=51$, $b=83$ кЭ/ μ_B ; б: ТМП $\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$. Точки — эксперимент, линия — расчет по формуле (7) при $a=35$, $b=93$ кЭ/ μ_B ; в: ТМП Co при 4.2 К, 1 — $h_1=0.018$, 2 — 0.1 Э; г: ТМП чистого Co при 4.2 К. 1 — $A=2A$ (0.018 Э), 2 — A (0.05 Э), 3 — $A=A$ (0.05 Э) — $2A$ (0.018 Э); д: ТМП $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$ при $h_1=0.1$ Э.

2. Экспериментальные результаты

На рис. 1 показаны спектры пленки и порошка $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ при 4.2 и 290 К (а) и спектр пленки $\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$ (б). Видно, что ЯМР спектры пленки и порошка совпадают. Резонансная частота при понижении температуры увеличивается пропорционально среднему магнитному моменту сплава: $f(4.2 \text{ К})/f(290 \text{ К})=1.077$, $\mu(4.2 \text{ К})/\mu(290 \text{ К})=1.074 \pm 0.01$, $\mu(77 \text{ К})=1.55 \mu_B/\text{атом}$; $f(4.2 \text{ К})=214.2$ МГц, $\mu(4.2 \text{ К})=\mu(77 \text{ К})$ в пределах точности измерений.

Для пленок $\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$ и $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ величина $h_{1m}f$ не зависит от частоты измерений (h_{1m} — амплитуда высокочастотного магнитного поля на частоте f , соответствующая максимуму $A_{\text{эхо}}$ зависимости $A_{\text{эхо}}(h_1)$). При $h_1 < h_{1m}$ спектры спин-эха $A_{\text{эхо}}(f)$ не зависят от уровня возбуждения. На рис. 2 показана зависимость амплитуды эха от h_1 для пленок и массивного материала (порошок $\phi < 80$ мкм) состава $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$. Для пленок максимум $A_{\text{эхо}}$ достигается в полях, значительно меньших, чем для массивного материала.

На всех исследованных нами пленках максимальный сигнал эха наблюдается при приложении радиочастотных импульсов в плоскости пленки в направлении, перпендикулярном оси легкого намагничивания (ОЛН).

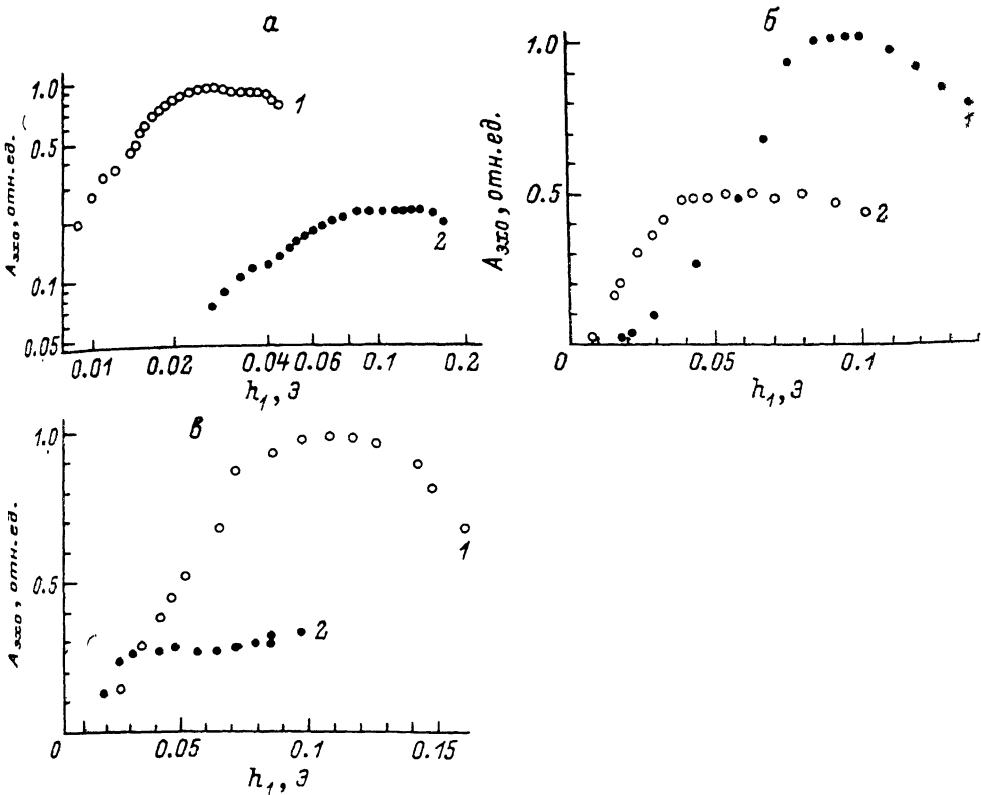


Рис. 2. Зависимости амплитуды ДЭ от амплитуды РЧ импульсов.

а: $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ при 4.2 К, $f=214$ МГц. 1 — ТМП, 2 — порошок; б: ТМП чистого Со при 4.2 К. 1 — $f=214$, 2 — 223 МГц; в: ТМП $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$ при 4.2 К. 1 — $f=205$, 2 — 235 МГц.

Если h_1 направлено вдоль легкой оси, то сигнал спинового эха не наблюдается. Это показывает, что сигнал эха ТМП формируется процессами вращения электронной намагниченности, а не процессами смещения доменных стенок в соответствии с данными [5].

На рис. 1, 2 показаны зависимости амплитуды эха $A_{\text{эхо}}(h_1)$ и ЯМР спектры тонких пленок Со и $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$. Форма спектров изменяется при

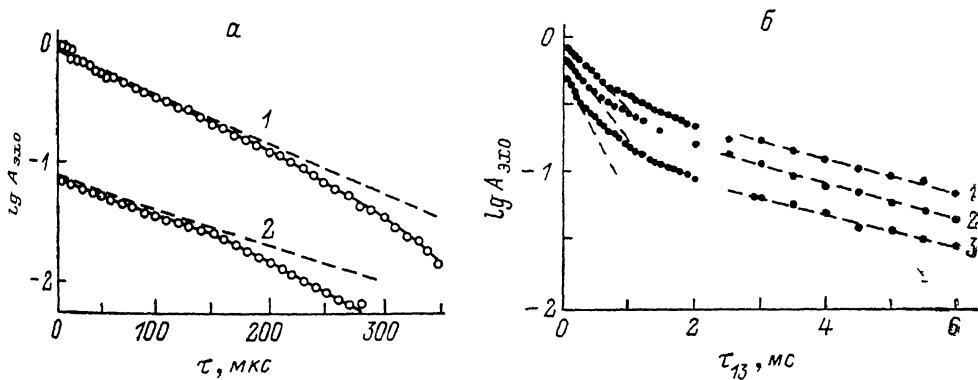


Рис. 3. Зависимость амплитуды эха ядер ^{59}Co в сплаве $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ от расстояния между возбуждающими импульсами при 4.2 К, $f=214$ МГц, $h_1=h_{1m}$.

а: двухимпульсное эхо. Точки — эксперимент, штрихи — расчет по модели (9). 1 — ТМП, $\alpha=2$, $T_2=438$ мкс, $B=248$ мкс; 2 — порошок $\alpha=2$, $T_2=344$ мкс, $B=252$ мкс; б: стимулированное эхо. ТМП, $\tau_1=10$ мкс. 3 — $h_1=0.015$ Э, $T_{13}=485$ мкс, $T_{17}=3.5$ мс; 2 — 0.026 Э, 700 мкс, 3.3 мс; 1 — 0.041 Э, 936 мкс, 3.3 мс.

изменении уровня возбуждения h_1 , и величина $h_{1m} f$ существенно зависит от частоты. Это может быть следствием двухфазности пленок.

Спады двухимпульсного и стимулированного эха неэкспоненциальные (рис. 3, а, б). При 4.2 К мгновенная скорость спада ДЭ увеличивается с ростом τ (расстояния между возбуждающими РЧ импульсами), а мгновенная скорость спада СЭ уменьшается при увеличении τ_{13} — интервала между первым и третьим возбуждающими импульсами. При 4.2 К такое поведение ДЭ и СЭ наблюдалось нами для пленок всех указанных составов и порошка $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$. Время релаксации T_2 определялось по начальному участку спада ДЭ (при $\tau < 100$ мкс), время релаксации T_{1s} — по начальному участку ($\tau_{13} < 200$ мкс) спада СЭ, T_{1i} — по конечному участку ($\tau_{13} > 1500$ мкс). Спады СЭ на этих участках аппроксимировались экспоненциальной зависимостью от расстояний между импульсами.

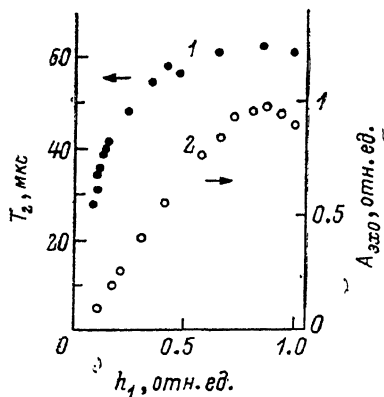


Рис. 4. Зависимость времени поперечной релаксации T_2 и амплитуды ДЭ от амплитуды возбуждения для ТМП Со при 77 К, $f=223$ МГц. T_2 (1), $A_{\text{эхо}}$ (2).

На рис. 4 показаны зависимости $T_2(h_1)$ и $A_{\text{эхо}}(h_1)$ при 77 К для пленок Со. Для всех исследованных нами пленок времена релаксации T_1 и T_2

растут с ростом h_1 , и при $h_1 > h_{1m}$ зависимость $T_2(h_1)$ выходит на насыщение. Аналогичное поведение времени T_1 и T_2 с ростом h_1 наблюдалось и на массивном материале $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$. Так, например, при 290 К и $f=197$ МГц для пленки и массивного материала указанного состава получено, что а) при $h_1=h_{1m}$ $T_2=30$ мкс; б) при h_1 таком, что $A_{\text{эхо}}=0.7A_{\text{max}}$, $T_2=20$ мкс. Для пленок Со при 77 К, $f=223$ МГц: а) при $h_1=h_{1m}$ $T_2=60$ мкс; б) при h_1 таком, что $A_{\text{эхо}}=0.1A_{\text{max}}$, $T_2=31$ мкс. В таблице приведены времена релаксации T_2 ТМП при 4.2 К и $h_1=h_{1m}$.

Параметры релаксации, описывающие спад двухимпульсного эха ядер ^{59}Co в ТМП при $T=4.2$ К. Модель: $A_{\text{эхо}} \sim \exp(-2\tau/T_2) \exp(-(\tau/B)^\alpha)$

Состав	Частота измерений, МГц	α	T_2 , мкс	B , мкс
$\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$	205	2.0 ± 0.1	353 ± 1	246 ± 2
$\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ (пленка)	213	2.1 ± 0.02	438 ± 7	248 ± 7
$\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ (порошок)	213	2*	344 ± 17	252 ± 7
$\text{Co}_{59}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$	235	2.1 ± 0.2	305 ± 22	248 ± 15
	245	2.1 ± 0.2	364 ± 33	249 ± 17
Со, 100 %	214	3.1 ± 0.1	223 ± 3	275 ± 3
	223	3.1 ± 0.1	205 ± 2	262 ± 2

* Для порошка $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ параметр α не определялся.

3. Обсуждение результатов

1) Коэффициенты усиления и фазовый состав ТМП. Зависимость $A_{\text{эхо}}(h_1)$ (рис. 2) имеет характерный вид кривой с широким максимумом, что является следствием распределения коэффициентов усиления η [16, 17] ($\eta = H_-/h_1$ [18], где H_- — переменная составляющая СТП на ядре при действии на образец РЧ импульса магнитного поля h_1). Зная h_{1m} — величину h_1 , соответствующую максимуму $A_{\text{эхо}}$, можно оценить средний коэффициент усиления $\bar{\eta}$ [19]

$$\tau_1 \bar{\eta} h_{1m} = \frac{2}{3} \pi, \quad (3)$$

где τ_1 — длительность РЧ импульса. Мы воспользовались соотношением (3), так как в ТМП сигнал спин-эха формируется предположительно за счет процесса вращения электронной намагниченности, близкого к процессу однородного вращения [5]. Учет распределения коэффициентов усиления приводит к тому, что при разумных видах функций распределения η , $\eta \tau_1 h_{1m} = 0.74-1.75$ [16,17]. Для пленок $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ (рис. 2) $h_{1m} = 0.03$ Э, поэтому $\eta = 13 \cdot 10^3$. Коэффициент усиления η , определенный для пленок Со, равен $9 \cdot 10^3$ при $f = 215$ МГц. Это согласуется с результатами работы [5], где для пленок Со найдено $\eta = 8.8 \cdot 10^3$. Для пленок $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$ $\eta = 10 \cdot 10^3$ (при $f = 235$ МГц).

В случае однородного вращения электронной намагниченности под действием РЧ поля при $h_1 \perp \text{ОЛН}$ [18]

$$\eta = H/H_A, \quad (4)$$

где H — сверхтонкое поле; H_A — поле наведенной одноосной анизотропии; η — коэффициент усиления однородного вращения. Отсюда для ТМП $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ $H_A = 15$ Э, что совпадает с результатом, полученным магнитостатическим методом [20].

Наблюдаемая зависимость значений амплитуд h_{1m} от частоты возбуждения эха f (рис. 2, б, в) может быть следствием двухфазности пленок Со и $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$. ЯМР спектры ядер ^{59}Co в Со пленке (рис. 1, з), измеренные при $h_1 = 0.018$ и 0.05 Э, могут быть отнормированы так, что совпадают в НЧ части спектра, где вклад в спин-эхо дает только одна фаза. Отметим, что условия возбуждения таковы, что ЯМР спектры каждой из фаз не уширяются при $h_1 = 0.018$ и 0.05 Э на всех частотах [15]. Спектр, полученный как разность A (0.05 Э) — $2A$ (0.018 Э), показан на рис. 1, з. Он представляет собой пик шириной 7 МГц с максимумом при $f = 223$ МГц, что совпадает с резонансной частотой ^{59}Co в ГПУ Со. Отметим, что в спектр при $h_1 = 0.018$ Э и $f < 225$ МГц ГПУ фаза вносит малый вклад и при $h_1 = 0.018$ Э наблюдаемый спектр обусловлен в основном ^{59}Co в ГЦК фазе. На рис. 1, в показаны ЯМР спектры, снятые при $h_1 = 0.018$ и 0.1 Э. Спектр при $h_1 = 0.1$ Э в высокочастотной части ($f > 220$ МГц) обусловлен в основном ГПУ фазой (рис. 1, в).

Амплитуда спин-эха при $h_1 = h_{1m}$ пропорциональна коэффициенту усиления [15] и количеству ядер ^{59}Co в каждой из фаз. Поэтому из спектров спин-эха и отношения коэффициентов усиления можно оценить количественное соотношение фаз. Так, для пленок Со η (213 МГц)/ η (223 МГц) $\approx h_{1m}$ (223 МГц)/ h_{1m} (213 МГц) = 1.7 , $A_{\text{эхо}}$ (213 МГц)/ $A_{\text{эхо}}$ (223 МГц) = 0.5 , ширины спектров ГЦК и ГПУ фаз близки. Поэтому пленка Со содержит ≈ 20 % ГЦК фазы (с большим коэффициентом усиления) и 80 % ГПУ фазы.

Исследуя зависимость $A_{\text{эхо}}(h_1)$ ТМП $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$ при разных частотах (рис. 2, в), можно заключить, что ЯМР спектр этой пленки представляет собой сумму спектров двух фаз. Определим, каким фазам соответствуют максимумы ЯМР спектра. Из анализа положений спутанных линий в ЯМР спектрах в упорядоченных и разупорядоченных ОЦК сплавах, близких к стехиометрическому составу $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$ [21], для сверхтонкого поля на ^{59}Co были оценены в рамках аддитивной модели вклады в СТП от магнитных моментов атомов Со и Fe, находящихся в трех ближайших координационных сферах атома Со. Для неупорядоченного тройного сплава $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$ с ОЦК решеткой, полагая $\bar{\mu} = 2\mu_B$, $\mu(\text{Co}) = 1.7\mu_B$ [22] и используя результаты [21], получим для среднего сверхтонкого поля H (ОЦК) = 218 кЭ (218 МГц). Для ГЦК сплава того же состава, учитывая в аддитивном приближении вклады в СТП на ^{59}Co от пяти координационных сфер, из данных [2] аналогичным образом получаем H (ГЦК) = 237 кЭ (237 МГц). Можно заключить, что высокочастотный пик на рис. 1, в обусловлен ГЦК фазой, а низкочастотный пик, соответствующий фазе с меньшим коэффициентом усиления, обусловлен ОЦК фазой.

Обнаруженная двухфазность пленок $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$ согласуется с равновесной диаграммой состояния Со—Fe—Ni сплавов [23]. Количество ГЦК и ОЦК фаз можно оценить аналогично тому, как это было сделано для Со.

Для пленок $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$ $\bar{\eta}(235 \text{ МГц})/\bar{\eta}(205 \text{ МГц})=2.2$ (рис. 2, в) и в спектре $A_{\text{эхо}}$ наблюдаются два пика примерно равной интенсивности. Поэтому пленка $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{31}\text{Ni}_{11}$ содержит 30 % ГЦК и 70 % ОЦК фазы.

2) Р а с п р е д е л е н и е с в е р х т о н к и х п о л е й. Распределение сверхтонких полей $P(H)$ на ядрах ^{59}Co для однофазных пленок $\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$ и $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ (рис. 1) при 4.2 К проанализировано в рамках аддитивной модели [1].

Аддитивная модель предполагает, что в данном сплаве сверхтонкое поле на ядре Co линейно зависит от магнитного момента атома кобальта $\mu(\text{Co})$ и момента окружающих атомов. Ограничиваясь первой координационной сферой атомов кобальта, имеем

$$H(n_1, n_2) = a\mu(\text{Co}) + b\mu_1(n_1, n_2), \quad (5)$$

где n_1, n_2 — числа атомов Fe и Ni в первой координационной сфере (1 КС) (для ГЦК решетки число атомов в 1 КС равно 12); $H(n_1, n_2)$ — сверхтонкое поле на атоме Co , имеющем локальное окружение (n_1, n_2) ; $\mu_1(n_1, n_2)$ — магнитный момент, приходящийся на один атом 1 КС; a, b — сверхтонкие константы аддитивной модели. Пренебрегая зависимостью локальных магнитных моментов атомов от ближайшего окружения и полагая для ГЦК решетки

$$\mu_1(n_1, n_2) = 1/12 [n_1\mu(\text{Fe}) + n_2\mu(\text{Ni}) + (12 - n_1 - n_2)\mu(\text{Co})],$$

получим

$$H(n_1, n_2) = (a + b)\mu(\text{Co}) + (b/12) [n_1(\mu(\text{Fe}) - \mu(\text{Co})) + n_2(\mu(\text{Ni}) - \mu(\text{Co}))]. \quad (6)$$

Если считать, что каждой комбинации чисел атомов в 1 КС (n_1, n_2) соответствует гауссовское распределение СТП с центром $H(n_1, n_2)$, возникающее за счет статистических флуктуаций магнитного момента более удаленных координационных сфер (2 КС, 3 КС. . .), то распределение сверхтонких полей $P(H)$ в сплаве будет иметь вид

$$P(H) = \sum_{n_1=0}^{12} \sum_{n_2=0}^{12-n_1} P(n_1, n_2) \exp[-(H - H(n_1, n_2))^2/\Delta H^2], \quad (7)$$

где $P(n_1, n_2)$ — вероятность комбинации (n_1, n_2) чисел атомов Fe и Ni в 1 КС; ΔH — ширина единичной гауссианы, т. е. ширина распределения сверхтонких полей на атомах, имеющих данное окружение (n_1, n_2) в 1 КС.

Выражение (7) записано с точностью до нормировочного множителя. В неупорядоченном тройном ГЦК сплаве вероятность $P(n_1, n_2)$ представляет собой полиномиальное распределение [24]

$$P(n_1, n_2) = \frac{C_1^{n_1} C_2^{n_2} C_3^{n_3} \cdot 12!}{n_1! n_2! n_3!}, \quad (8)$$

где $n_3 = 12 - n_1 - n_2$; C_1, C_2, C_3 — атомные доли Fe, Ni, Co соответственно.

Обработка спектров по аддитивной модели (5—8) проводилась на ЭВМ. Учитывалось 90 наиболее вероятных комбинаций (n_1, n_2) . Используя метод нелинейной регрессии, мы определили для каждого спектра параметры модели: СТП константы a и b , а также ширину единичной гауссианы ΔH . Магнитные моменты Fe, Co взяты из работы [22], $\mu(\text{Ni})$ — теоретические расчеты [25]. Расчет $\mu(\text{Co})$ для $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ по формуле (5) работы [26] дает величину, совпадающую с результатами нейтронографии [22]. На рис. 1 показаны $P(H)$, определенные из эксперимента и рассчитанные по аддитивной модели. Как видно, имеется хорошее согласие с экспериментом. Для $\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$ расчет дал $a=35$ кЭ/μ_B, $b=93$ кЭ/μ_B; для $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ $a=51$ кЭ/μ_B, $b=83$ кЭ/μ_B. Величины СТП констант a и b в (5), как видно, согласуются с данными, полученными из концентрационной зависимости СТП на ^{59}Co в сплавах Co-Ni [27] и ГЦК сплавах на основе Co с малым количеством примесей [2]. Так, например, для сплавов Co-Ni [27] $a=40$ кЭ/μ_B, $b=88$ кЭ/μ_B. В (5) величина $H(0, 0) = (a + b)\mu(\text{Co})$

имеет смысл СТП на ядре ^{59}Co , имеющем в 1 КС только атомы Со. Для чистого ГЦК Со $H(\text{Co})/\mu(\text{Co})=125 \text{ кЭ}/\mu_{\text{B}} [2^8]$, а для пленок составов $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ и $\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$ величины $(a+b)$ оказались равными 126 и 128 $\text{кЭ}/\mu_{\text{B}}$ соответственно. Таким образом, распределение СТП на ядрах ^{59}Co для пленок $\text{Co}_{78}\text{Ni}_{22}$ и $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ удовлетворительно описывается аддитивной моделью, учитывающей статистические флуктуации магнитного момента первой координационной сферы атома Со.

3) Времена релаксации и кинетика спада эхо. Во всех тонких пленках, как и в массивном материале, наблюдается зависимость T_2 от h_1 . Такое поведение времен релаксации для массивного материала объяснялось в [9, 28] наличием широкого распределения локальных коэффициентов усиления и времен релаксации для ядер в доменных границах, которое возникает из-за неоднородного вращения электронной намагниченности при движении доменной границы. Наблюдаемая нами близость времен релаксации для ТМП и массивного $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ свидетельствует о том, что, вероятно, механизмы релаксации в ТМП и массивных материалах одинаковы.

Увеличение T_2 с ростом h_1 , которое наблюдается в ТМП, показывает, что вращение электронной намагниченности в ТМП под действием резонансного РЧ импульса неоднородное и существует распределение η и T_2 , причем, как и в массивном материале, те ядра, у которых большие значения η , имеют более короткое время релаксации T_2 . Уменьшение мгновенной скорости спада СЭ при увеличении τ_{13} (рис. 3, б) может объясняться теми же причинами: распределением времен продольной релаксации T_1 и коэффициентов усиления η [9]. Однако при 4.2 К наблюдалось увеличение мгновенной скорости спада ДЭ А (2τ) (рис. 3, а) для пленок всех составов и порошка $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$. Такое поведение спада ДЭ, как указывалось во введении, не может быть объяснено каким-либо распределением времен поперечной релаксации.

Возможные механизмы [12, 13] увеличения мгновенной скорости спада ДЭ с ростом τ в ферромагнетиках обсуждались во введении. Как видно, первый нелинейный по τ член в разложении $\ln A_{\text{эхо}}(2\tau)$ по степеням τ для $A_{\text{эхо}}$ из выражения (1) $\sim \tau^2$, а для выражения (2) $\sim \tau^4$. В ряде работ для описания кинетики спада электронного ДЭ при наличии спектральной диффузии [29, 30] использовалось выражение

$$A_{\text{эхо}}(2\tau) \sim e^{\alpha} \exp(-2\tau/T_2) \exp(-(\tau/B)^{\alpha}). \quad (9)$$

Для различных модельных процессов спектральной диффузии, рассмотренных в [30], $\alpha=2$ или $\alpha=3$. При $\alpha=2$ выражение (9) переходит в формулу (1), следующую из модели электронно-ядерной релаксации [12]. Для анализа кинетики спада ДЭ мы аппроксимировали экспериментальные зависимости амплитуды ДЭ от τ выражением общего вида (9), зависящим от трех параметров. Параметры α , T_2 , B определялись методом наименьших квадратов. Показатель степени α определялся для каждого состава как общий для совокупности зависимостей $A_{\text{эхо}}(2\tau)$, измеренных при различных амплитудах возбуждения h_1 , а величины T_2 и B рассчитывались для каждого значения величины h_1 . Параметры T_2 и B , приведенные в таблице, определены при $h_1=h_{1m}$. Для порошка $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$ параметр α не удалось рассчитать с достаточной точностью, и он был взят $\alpha=2$, как для пленки того же состава. Зависимость (9), как видно на рис. 3, а, хорошо описывает кинетику спада ДЭ при 4.2 К в исследованном временном интервале $10 \leq \tau \leq 320$ мкс.

Зависимость $\ln A_{\text{эхо}}(2\tau)$ вида (9) содержит линейный и нелинейный по τ члены; величина T_2 имеет смысл времени поперечной релаксации. Как видно из таблицы, кинетика спада ДЭ чистого Со и сплавов на основе Со различна: для чистого Со нелинейный член $\sim \tau^3$ ($\alpha \approx 3$ в (9)), а для всех исследованных ТМП Со—Fe—Ni сплавов нелинейный член $\sim \tau^2$ ($\alpha \approx 2$ в (9)). Отметим, что константы B в (9) оказались одинаковыми для тонкой пленки и массивного материала $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$.

Обнаруженная квадратичная зависимость $\ln A_{\text{эхо}}(2\tau)$ от τ для Co—Fe—Ni сплавов согласуется с кинетикой спада ДЭ вида (1), следующей из модели электронно-ядерной релаксации, обусловленной затуханием электронной намагниченности в моменты фазировки ядерных изохромат [12]. В работе [13] показано, что диполь-дипольное взаимодействие нерезонансных ядер с резонансными в сочетании с сул-накамуровским взаимодействием нерезонансных ядер может привести к квазигауссовской кинетике спада эха вида (2). Для исследованных сплавов роль нерезонансных ядер могут играть те ядра ^{59}Co , резонансные частоты которых лежат вне полосы частот возбуждающих РЧ импульсов. Можно предположить также, что для Co—Fe—Ni сплавов существует и обычная экспоненциальная компонента спада ДЭ с характерным временем поперечной релаксации T_2 , обусловленная сул-накамуровским взаимодействием резонансных ядер ^{59}Co [31] и одномагнитными процессами ядерной релаксации [9].

Обнаруженное различие в кинетике спада ДЭ между чистым Co и Co—Fe—Ni сплавами, вероятно, связано с тем, что неоднородность СТП в сплавах является микроскопической, т. е. СТП на ядрах ^{59}Co пространственно некоррелированы, в то время как в Co ТМП радиус корреляции СТП может значительно превышать межатомное расстояние. Однако в настоящее время отсутствует теория, которая объяснила бы наблюдаемую для пленок Co кубическую нелинейность спада $\ln A_{\text{эхо}}(2\tau)$ и тот факт, что константа B , описывающая неэкспоненциальную компоненту спада ДЭ, оказалась одинаковой для тонкой пленки и массивного порошкового образца $\text{Co}_{58}\text{Fe}_{11}\text{Ni}_{31}$.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Strauss G. H. // Phys. Rev. B. 1974. V. 4. N 9. P. 3106—3110.
- [2] Shavishvili T. M., Kiliptari I. G. // Phys. St. Sol. (b). 1979. V. 92. N 1. P. 39—47.
- [3] Landolt-Börnstein. Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technologi. New series / Ed. K.-H. Chief Hellwege, O. Madelung. Group III. Crystall and Solid State Physics. V. 19. Magnetic Properties of Metals. Subvol. at 3d, 4d, 5d Elements, Alloys and Compounds / Ed. H. P. J. Wijn. Berlin, 1986. 653 p.
- [4] Салацкий Н. М., Мальцева В. К., Лазарева Л. В. // Тр. VI Междунар. коллоквиума по тонким пленкам. Минск, 1974. С. 149—150.
- [5] Устинов В. Б. и др. // ФТТ. 1968. Т. 10. № 5. С. 1589—1591.
- [6] Салацкий Н. М., Ерухимов М. Ш. // Физические свойства и применение магнитных пленок. М., 1975. 222 с.
- [7] Hardy Wilton A. // J. Appl. Phys. Suppl. 1961. V. 32. N 3. P. 122S—123S.
- [8] Streever R. L. // Phys. Rev. 1964. V. 134. N 6A. P. A1612—A1617.
- [9] Stearns M. B. // Phys. Rev. 1969. V. 187. N 2. P. 648—656.
- [10] Куркин М. И., Сериков В. В. // ФТТ. 1970. Т. 12. № 12. С. 3524—3529.
- [11] Погорельский А. Н., Котов В. В. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 4. С. 1013—1016.
- [12] Цифринович В. И. // ФТТ. 1978. Т. 20. № 6. С. 1657—1660.
- [13] Welz D. // Physica. 1986. V. 141B. N 2. P. 121—129.
- [14] Erdmann K., Welz D., Lerchner H., Rosenberg M. // Hyp. Int. 1983. V. 15/16. N 2. P. 589—592.
- [15] Dean R. H., Urwin R. J. // J. Phys. C.: Sol. St. Phys. 1970. V. 3. N 8. P. 1147—1152.
- [16] Stearns M. B. // Phys. Rev. 1967. V. 162. N 2. P. 496—509.
- [17] Kinnear R. W. N., Campbell S. J., Chaplin D. H., Wilson G. W. H. // Phys. St. Sol. (a). 1980. V. 58. N 2. P. 507—515.
- [18] Туров В. А., Петров М. П. Ядерный магнитный резонанс в ферро- и антиферромагнетиках. М., 1969. 260 с.
- [19] Bloom A. L. // Phys. Rev. 1955. N 4. P. 1105—1111.
- [20] Сирота Н. Н., Сухвалов С. В. // ДАН БССР. 1969. Т. 13. № 1. С. 23—25.
- [21] Muraoka Y., Shiga M., Yasuoka H., Nakamura Y. // J. Phys. Soc. Jap. 1976. V. 40. N 2. P. 414—417.
- [22] Shibuya N., Nakai Y., Yamasaki K., Kunitomi N. // J. Phys. Soc. Jap. 1979. V. 46. N 2. P. 475—480.
- [23] Tahara M., Suzuki T. // Bull. of the Tokyo Inst. of Techn. 1972. N 112. P. 49—60.
- [24] Корн Г., Корн Т. Справочник по математике для научных работников и инженеров. М., 1968. 720 с.
- [25] Jo T., Hasegawa H., Kanamori Y. // J. Phys. Soc. Jap. 1973. V. 35. N 1. P. 57—62.
- [26] Капельницкий С. В., Покатиллов В. С., Голикова В. В. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 4. С. 261—263.

- [27] Portis A. M., Gossard A. C. // J. Appl. Phys. Suppl. 1960. V. 31. N 5. P. 205S—213S.
- [28] Mims W. B., Nassan K., McGee J. D. // Phys. Rev. 1969. V. 126. N 6. P. 2059—2069.
- [29] Салихов К. М., Семенов А. Г., Цветков Ю. Д. Электронное спиновое эхо и его применение. М., 1976. 342 с.
- [30] Hole D., Jaccarino V., Ngwe T., Pincus P. // Phys. Rev. 1969. V. 186. N 2. P. 292—305.
- [31] Weger M. // Phys. Rev. V. 128. N 4. P. 1505—1511.

ЦНИИчермет
Москва

Поступило в Редакцию
16 ноября 1989 г.
