# Исследование пространственных флуктуаций намагниченности в метастабильных нанокристаллических пленках сплавов на основе Fe методом спин-волновой спектроскопии

© Р.С. Исхаков, С.В. Столяр\*, Л.А. Чеканова, В.С. Жигалов

Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук, 660036 Красноярск, Россия \*Красноярский государственный университет, 660041 Красноярск, Россия E-mail: rauf@iph.krasnoyarsk.su

#### (Поступила в Редакцию 6 сентября 2000 г. В окончательной редакции 17 ноября 2000 г.)

Исследован спектр стоячих спиновых волн в пленках нанокристаллического Fe, полученного методом импульсно-плазменного испарения. Восстановлена дисперсионная зависимость этих волн в диапазоне волновых векторов  $(0.2-3.2)\cdot10^6$  сm<sup>-1</sup>. Обнаружена модификация закона дисперсии, обусловленная флуктуациями намагниченности размером 100 Å. Флуктуации намагниченности обсуждаются в рамках неоднородного распределения атомов C в атомной структуре нанокристаллических пленок Fe.

Цель настоящей работы заключается в исследовании магнитных неоднородностей метастабильных нанокристаллических пленок сплавов на основе Fe, полученных методом импульсно-плазменного испарения (ИПИ). Методика ИПИ позволяет реализовывать в пленочном состоянии ферромагнитные пересыщенные твердые растворы Fe(C) с метастабильными ГЦК- (ГПУ-) симметриями ближайшего окружения [1,2]. Ранее на этих образцах, допированных изотопом Fe<sup>57</sup>, были сняты ЯГР-спектры (источник  $Co^{57}(Cr)$ ) при комнатной температуре [3]. Линии спектра исходной пленки очень широкие, что характерно для ультрадисперсного либо аморфного состояния Fe. После часового отжига при T = 470 K линии спектра сужаются, а сами спектры удовлетворительно аппроксимируются двумя зеемановскими секстетами со сверхтонкими полями  $H_1 = 211$  kOe и  $H_2 = 189$  kOe. Последнее свидетельствует о двух различных окружениях атомов Fe в исследуемом материале, или, другими словами, о том, что пленки Fe являются неоднородными в магнитном отношении средами. Исследование неоднородных ферромагнетиков — определение типа флуктуирующего параметра ( $\alpha(r)$  — обменное взаимодействие, M(r) — намагниченность насыщения,  $\beta(r)$  — константа анизотропии и т.д.) и измерение корреляционного радиуса этого флуктуирующего параметра r\* — непростая задача. Информация о типе магнитных неоднородностей и их пространственной протяженности может быть получена из анализа спектров спиновых волн.

Спектр спиновых волн в ферромагнитных пленках, как показывают теория и многочисленные эксперименты, представляет собой дискретный набор отдельных дисперсионных кривых  $\omega(k_n, \chi)$ . Зависимость частоты  $\omega$  от волнового вектора  $\chi$  волны, распространяющейся в плоскости пленки, экспериментально регистрируется методом бриллюэн-манделыштамовского рассеяния света. В случае  $\chi = 0$  спектр реализуется как стоячие (по толщине пленки) спиновые волны, экспериментально регистрируемые методом спин-волнового резонанса (CBP). Резонансные частоты этих спиновых волн определяются как средними значениями магнитных параметров, так и флуктуациями этих параметров в изучаемой ферромагнитной пленке.

В настоящее время в тонких ферромагнитных пленках теоретически предсказаны и экспериментально обнаружены методом СВР два вида модификаций дисперсионной кривой  $\omega(k)$ , обусловленные двумя типами магнитных неоднородностей. К первому типу относятся неоднородности, характеризующиеся изотропным и однородным распределением такого флуктуирующего параметра, как  $\alpha(r)$ ; характерную модификацию  $\omega(k)$  называют "изломом по обмену"; ко второму типу относятся флуктуации M(r). Модификацию  $\omega(k)$  в этом случае называют "изломом по намагниченности". В таких неоднородных системах дисперсионный закон для спиновых волн выглядит следующим образом [4,5]:

$$\omega(k) = \omega_0 + \langle \alpha M \rangle g k^2 (1 - \gamma_i^2 J_i(k)), \qquad (1)$$

где  $\omega_0/g$  — внутреннее поле ферромагнетика,  $i = \alpha, M$ ;  $\gamma_i^2 = (\Delta_i/i)^2$  — интенсивность флуктуирующего параметра *i*. Зависимости функций  $J_{\alpha}(k)$  и  $J_m(k)$  существенно отличаются вблизи характерного волнового вектора  $k^* = 1/r_i$ , определяемого корреляционным радиусом магнитной неоднородности r<sub>i</sub>. Так, в области  $k^*$  числовые значения функции  $J_{\alpha}$  меняются с меньшей величины на бо́льшую (от 1/3 до 5/4). Характер изменения функции J<sub>m</sub> в районе k<sup>\*</sup> совершенно противоположен: с большей величины на меньшую (от 1/2 до 0). И лишь затем, при  $k = 2k^*$ , числовые значения функции J<sub>m</sub> возрастают, т.е. меняются с меньшей величины на бо́льшую (от 0 до 5/4). Благодаря различию поведения  $J_{lpha}(k)$  и  $J_m(k)$  в области  $k \sim k^*$  становятся возможными экспериментальное определение главного флуктуирующего параметра спиновой системы неоднородного ферромагнитного сплава ( $\alpha$  либо *M*), а также измерение корреляционного радиуса этого флуктуирующего параметра. Данная экспериментальная идентификация является задачей метода спин-волновой спектроскопии. Многочисленными исследованиями последних лет методом СВР были зарегистрированы модификации закона дисперсии спиновых волн в ферромагнитных пленках аморфных сплавов и неоднородных пересыщенных твердых растворов, обусловленные как флуктуациями α, так и флуктуациями М. Оказалось, что причиной флуктуаций  $\alpha, M$  являются химические неоднородности, причем в неоднородных сплавах типа переходный металл-металлоид химические неоднородности проявляются через флуктуации обменного параметра  $\alpha$  (CoP [6], FeB [7]), а в сплавах переходный металл-переходный металл — через пространственные флуктуации модуля намагниченности M (CoZr [8], FeZr [9]).

### 1. Образцы и методика эксперимента

Нанокристаллические пленки сплавов  $Fe_{80}C_{20}$ , Fe<sub>74</sub>Co<sub>20</sub>B<sub>6</sub> были получены методом ИПИ в вакууме с давлением остаточных газов  $P_0 = 5.5 \cdot 10^{-6} \,\mathrm{mm}$  Hg. В качестве подложек использовалось стекло. Толщина исследуемых пленок варьировалась от 300 до 3000 Å. Электронная и химическая структуры этих пленок определялись из исследований фотоэлектронных и спектрометре Оже-спектров на фотоэлектронном (с Мд-анодом) в ИФП СО РАН. Спектры СВР нанокристаллических пленок Fe изучались на спектрометре x-band  $(f = 9.2 \,\text{GHz})$ стандартном при комнатной температуре. Полученные спектры СВР были приведены в работе [2] с обсуждением граничных условий для намагниченности, реализующихся для этих пленок. Здесь лишь укажем, что в исследуемых пленках формируются антисимметричные граничные условия, при которых связь между номером моды спектра СВР и значением волнового вектора стоячей спиновой волны k определяется соотношением  $k_n = \pi n/d$  (n = 1, 2, 3...; *d* — толщина пленки), а резонансные поля пиков СВР удовлетворяют уравнению

$$H_n = \omega/\gamma + 4\pi M - \eta^{\text{eff}} k_n^2.$$
 (2)

С помощью этого выражения рассчитывались численные значения эффективной спин-волновой жесткости  $\eta^{\text{eff}}$  ( $\eta = \alpha M$ ) по формуле

$$\eta^{\text{eff}}(k) = (d/\pi)^2 (H_1 - H_2)/(n^2 - 1).$$
 (3)

Полученные таким образом функциональные зависимости  $\eta^{\text{eff}}(k)$  сопоставлялись с теоретической кривой  $n^{\text{eff}} = \langle \eta \rangle (1 - \gamma_i^2 J_i(k))$  (см. (1), [4,5]) с целью определения доминирующего флуктуирующего магнитного параметра  $i = \alpha, M$  и измерения корреляционного радиуса  $r^*$ .

## 2. Экспериментальные результаты и обсуждение

Анализ полученных результатов начнем с рассмотрения спектров СВР, измеренных на пленках состава Fe<sub>74</sub>Co<sub>20</sub>B<sub>6</sub>. На рис. 1 приведены экспериментальные дисперсионные кривые в координатах  $\delta H_{1,n} = H_1 - H_n, n^2$ для двух пленок, отличающихся толщиной:  $d_1 = 1100$  Å,  $d_2 = 960$  Å. Как видно из этого рисунка, наблюдаемая модификация  $\delta H_{1,n}(n^2) \sim \omega(k^2)$  состоит в следующем: в длинноволновой части спектра СВР дисперсионная кривая характеризуется изломом, при котором эффективная обменная жесткость  $\eta^{\text{eff}}$  меняется на меньшее значение  $(\eta_1 > \eta_2)$ . Этот излом, согласно классификации работы [4], называется "обменным". Регистрация координаты точки излома n<sub>i</sub> позволяет определить критическое волновое число; здесь величина  $k_{\alpha} = 1.1 \cdot 10^6 \, {\rm cm}^{-1}$  $(k = \pi n/d)$  для обеих пленок. Далее, в области больших волновых векторов k, происходит еще одно изменение величины эффективной жесткости  $\eta$  — излом в противоположную сторону, при котором  $\eta$  изменяется с меньшей величины на бо́льшую ( $\eta_2 < \eta_3$ ). Этот излом "по намагниченности" (согласно [4]) характеризуется для исследуемого сплава Fe74C20B6 волновым числом  $k_m = 1.85 \cdot 10^6 \,\mathrm{cm}^{-1}$ . Выше указывалось на то обстоятельство, что зависимость  $\omega(k)$ , обусловленная флуктуациями М и называемая изломом "по намагниченности", сопровождается двумя особенностями на дисперсионной кривой  $\omega(k)$  на волновых векторах  $k_m$ и 2k<sub>m</sub>. В данном случае на экспериментальной кривой  $\delta H_{1,n}(n^2)$  восстановлен только участок теоретической дисперсионной кривой  $\omega(k^2)$  в области  $k < 2k_m$ , так как оценка граничного волнового вектора  $k_b$ , определяемого последним пиком спектра СВР, дает величину  $k_b \sim 2.2 \cdot 10^6 \,\mathrm{cm}^{-1}$ , T. e.  $k_b/k_m < 2$ .

Регистрация двух типов изломов (излома "по обмену" и "по намагниченности") в пленках исследуемого сплава Fe<sub>74</sub>C<sub>20</sub>B<sub>6</sub> представляет собой неожиданный экспериментальный результат. Дело в том, что данный сплав относится к системе переходный металл-металлоид.



**Рис. 1.** Зависимости разности резонансных полей пиков СВР  $\delta H_{1,n} = H_1 - H_n$  от  $n^2$  для двух пленок сплава Fe<sub>74</sub>C<sub>20</sub>B<sub>6</sub> разных толщин (*n* — номер пика).



**Рис. 2.** Зависимости разности резонансных полей пиков СВР  $\delta H_{1,n} = H_1 - H_n$  от  $n^2$  для двух пленок сплава Fe<sub>80</sub>C<sub>20</sub> разных толщин.

А в сплавах этой системы ранее регистрировались только изломы "по обмену". Например, в пленках сплавов CoP [6], FeB [7] и т. д., в которых методом CBP наблюдались только модификации экспериментальной зависимости кривой  $\delta H_{1,n}(n^2)$ , обусловленные флуктуациями обменного параметра  $\alpha$ . Поэтому регистрацию излома "по намагниченности" в метастабильном сплаве Fe<sub>74</sub>C<sub>20</sub>B<sub>6</sub> мы связываем с наличием в системе атомов второго металлоида — углерода. Дополнительные исследования подтвердили наше предположение.

На рис. 2 приведены зависимости резонансных полей  $\delta H_{1,n}$  от квадрата спин-волновой моды  $n^2$  спектров CBP двух пленок Fe(C), отличающихся толщиной:  $d_1 = 1200$  Å и  $d_2 = 500$  Å. Видно, что дисперсионная кривая  $\delta H_{1,n}(n^2) \sim \omega(k^2)$  пленки толщиной  $d_1 = 1200 \,\text{\AA}$  характеризуется двумя особенностями (изломами) на волновых векторах  $k' = 0.99 \cdot 10^{6} \,\mathrm{cm}^{-1}$ и  $k'' = 1.6 \cdot 10^6 \,\mathrm{cm}^{-1}$ . Вблизи характерного волнового вектора k' обменная жесткость изменяется с меньшей величины на бо́льшую ( $\eta_1 < \eta_2$ ), а при волновом векторе k'' происходит изменение в противоположную сторону ( $\eta_2 > \eta_3$ ). Такое поведение кривой  $\delta H_{1,n}(n^2)$ свидетельствует о том, что причиной наблюдаемой модификации закона дисперсии для спиновых волн в пленке Fe(C) толщиной  $d_1 = 1200 \text{ Å}$  являются флуктуации намагниченности М. На это также указывает сопоставление численных значений характерных волновых векторов k' и k'', которое близко к теоретически предсказанному соотношению k'' = 2k' (см. [4]). Величина волнового вектора  $k' = k_m$  определяется размером пространственной неоднородности намагниченности М в исследуемом сплаве Fe(C):  $k_m = 1/r_m$ , где  $r_m$  — корреляционный радиус флуктуаций намагниченности М. Для пленок сплава Fe(C) оценка дает величину  $r_m = 100$  Å. Отметим, что модификация кривой  $\delta H_{1,n}(n^2)$  более тонкой пленки толщиной 500 Å, имитирующая "обменный" излом, на самом деле также обусловлена флуктуациями намагниченности в неоднородном сплаве Fe(C). Из рис. 2 видно, что кривая  $\delta H_{1,n}(n^2)$  здесь характеризуется особенностью вблизи волнового вектора  $k' = 1.57 \cdot 10^6 \,\mathrm{cm}^{-1}$ , в области которого обменная жесткость  $\eta$  изменяется с большей величины на меньшую ( $\eta_1 > \eta_2$ ). Дело в том, что диапазон наблюдаемых волновых векторов  $k_n = \pi n/d$  в спектре СВР данной пленки (d = 500 Å) таков, что значение волнового вектора k<sub>m</sub>, характеризующего размер флуктуаций намагниченности М, удовлетворяет неравенству  $k_1 < k_m < k_2$ . Действительно,  $k_1 = 0.63 \cdot 10^{-6} \,\mathrm{cm}^{-1}, \, k_2 = 1.26 \cdot 10^{-6} \,\mathrm{cm}^{-1}, \,\mathrm{a}$  величина  $k_m = 1 \cdot 10^{-6} \, \mathrm{cm}^{-1}$ . Поэтому наблюдаемая модификация  $\delta H_{1,n}(n^2)$  в основном обусловлена особенностью функции  $J_m(k)$  в области  $2k_m$ , на это также указывает численное значение характерного волнового вектора  $k' = 1.57 \cdot 10^6 \, \mathrm{cm}^{-1}$ , близкое к величине волнового вектора k'', проявляющегося на дисперсионной кривой пленки толщиной  $d_1 = 1200$  Å. Заметим, что аналогичная ситуация наблюдалась ранее [4] на пленках аморфного сплава Со<sub>93</sub>Zr<sub>5</sub>P<sub>2</sub> разной толщины. Укажем, что на этих пленках сплава переходный металл-металл впервые была зарегистрирована полная модификация зависимости  $\omega(k^2)$ , обусловленная флуктуациями M и называемая изломом "по намагниченности".

Таким образом, в метастабильных пленках сплава Fe(C), представляющих собой твердые растворы внедрения, удалось зарегистрировать экспериментальную зависимость  $\delta H_{1,n}(n^2)$ , полностью согласующуюся с теоретической модификацией  $\omega(k^2)$ , обусловленной флуктуациями намагниченности [4,5], или, другими словами, измерить зависимость излома "по намагниченности" со всеми особенностями. Отметим, что по виду модификации  $\omega(k^2)$  данный сплав Fe(C) отличается от сплавованалогов системы переходный металл-металлоид (FeB, CoP и т. д.) — твердых растворов замещения. В перечисленных сплавах ранее регистрировались только "обменные" изломы.



**Рис. 3.** Зависимость эффективной обменной жесткости  $\eta^{\text{eff}}$  от волнового вектора *k* для пленок сплава Fe<sub>80</sub>C<sub>20</sub> разных толщин.



**Рис. 4.** Зависимость величины среднего значения обменной жесткости  $\langle \eta \rangle$  от толщины пленки в сплаве Fe<sub>80</sub>C<sub>20</sub>.

Экспериментальное излучение зависимости  $\delta H_{1,n}(n^2)$ позволяет также определить и другие характеристики обнаруженной магнитной неоднородности: интенсивность флуктуаций  $\gamma_m^2$  и среднее значение  $\langle \eta \rangle$ . Вычислим эффективную обменную жесткость, используя выражение (2), из резонансных полей  $H_n(n^2)$ . Рассчитанная таким образом зависимость  $\eta^{\text{eff}}(k)$  приведена на рис. 3 для трех пленок, отличающихся толщиной ( $d_1 = 500$  Å,  $d_2 = 1200$  Å и  $d_3 = 2300$  Å). Вид функциональной зависимости  $\eta^{\text{eff}}(k)$  свидетельствует о том, что в сплаве Fe(C) в основном флуктуирует намагниченность M. Волновой вектор, определяемый величиной  $r_m = 1/k_m$ , остается постоянным для всех толщин пленок изучаемого сплава:  $k_m = 10^6 \,\mathrm{cm}^{-1}$ . Согласно теоретическим выражениям для функции  $J_m(k)$  в (1) (см. [4,5]), величины эффективной обменной жесткости  $\eta^{\text{eff}}(k)$ , измеренные в области волновых векторов  $k_m < k < 2k_m$ , представляют собой средние значения спин-волновой жесткости  $\langle \eta \rangle$  в исследуемой пленке. На рис. 4 приведена зависимость величин  $\langle \eta \rangle$ , рассчитанных в области соответствующих волновых векторов k, в координатах  $\langle \eta \rangle$ , d для пленок сплава Fe(C). Видно, что величина среднего значения  $\langle \eta \rangle$  в пленках этих сплавов, полученных по указанной технологии, зависит от толщины пленки d. Ранее (см. [6-9]) такая зависимость не наблюдалась. Обнаруженная особенность отражает тот факт, что кинетика затвердевания конденсатов Fe(C) зависит от скорости охлаждения конденсата, которая в свою очередь зависит от его толщины. Другими словами, фазовый состав исследуемых пленок Fe (ГЦК-Fe(C), ГПУ Fe(C), цементит железа Fe<sub>3</sub>C [1,2]) определяется толщиной изготовленной пленки. Впоследствии этот вывод был подтвержден результатами работы [10]. Здесь методом ЯГР на электронах конверсии был также подтвержден факт изменения фазового состава пленки Fe(C) по толщине. По выражению (1), зная величины  $\langle \eta \rangle$ , можно провести оценку интенсивности наблюдаемых флуктуаций намагниченности. Оценка дает следующую величину:  $\gamma_m^2 = 0.6$ . Отметим, что эта величина  $\gamma_m^2$  остается постоянной для пленок Fe(C) разных толщин. Таким образом, из экспериментальных зависимостей  $\delta H_{1,n}(n^2)$  получены величины корреляционного радиуса  $r_m$  и оценены средние значения спин-волновой жесткости  $\langle \eta \rangle$  и интенсивности  $\gamma_m^2$  регистрируемых флуктуаций M, характеризующих пленки метастабильных сплавов Fe(C). Оказалось, что величины  $\gamma_m^2$  и  $r_m$  не зависят, а величины  $\langle \eta \rangle$  зависят от толщины пленки Fe(C), полученной методом ИПИ. Последнее отличает данные пленки, например, от случая пленок CoP [6], в которых все три величины от толщины пленок не зависят.

Таким образом, в настоящей работе методом СВР в пленках нанокристаллического сплава Fe(C) обнаружена модификация закона дисперсии спиновых волн, обусловленная флуктуациями намагниченности размером ~ 100 Å. По-видимому, флуктуации намагниченности M вызваны неоднородным распределением атомов C в атомной структуре нанокристаллических пленок Fe. Установленный эффект отличает сплавы Fe(C), представляющие собой твердые растворы внедрения, от сплавов-аналогов системы переходный металл (Fe, Co)-металлоид (B, P, Si) — твердых растворов замещения, в которых главным флуктуирующим параметром выступает обменное взаимодействие.

### Список литературы

- P.C. Исхаков, С.В. Комогорцев, С.В. Столяр, Д.Е. Прокофьев, В.С. Жигалов. ФММ 88, 3, 56 (1999).
- [2] Р.С. Исхаков, С.В. Комогорцев, С.В. Столяр, Д.Е. Прокофьев, В.С. Жигалов, А.Д. Балаев. Письма в ЖЭТФ 70, 11, 727 (1999).
- [3] Г.И. Фролов, О.А. Баюков, В.С. Жигалов, Л.И. Квеглис, В.Г. Мягков. Письма в ЖЭТФ 61, 1, 61 (1995).
- [4] В.А. Игнатченко, Р.С. Исхаков. ЖЭТФ 75, 4, 1438 (1978); Р.С. Исхаков, Л.А. Чеканова, С.Я. Кипарисов, И.А. Турпанов, И.В. Богомаз, А.С. Чеканов. Препринт № 283Ф. Ин-т физики им. Л.В. Киренского СО АН СССР, Красноярск (1984). 15 с.
- [5] М.В. Медведев. ФММ 67, 5, 876 (1989).
- [6] В.А. Игнатченко, Р.С. Исхаков, Л.А. Чеканова, Н.С. Чистяков. ЖЭТФ 75, 2, 876 (1978).
- [7] L.J. Maksimowicz, R. Zuberek. J. Magn. Magn. Mater. 58, 303 (1986).
- [8] Р.С. Исхаков, М.М. Бруштунов, А.С. Чеканов. ФТТ 29, 9, 1214 (1987).
- [9] Р.С. Исхаков, М.М. Бруштунов, А.Г. Нармонев, И.А. Турпанов. ФММ **79**, *5*, 122 (1995).
- [10] A.A. Novakova, E.A. Gan'schina, T.Yu. Kiseleva, I.K. Rodin, V.S. Zhigalov. Moscow Int. Symp. on Magnetism: book of Abstracts (June 20–24, 1999). Moscow (1999). P. 259.