ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ

ВЫСШЕГО ПРОФЕССИОНАЛЬНОГО ОБРАЗОВАНИЯ

«НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ

«ВЫСШАЯ ШКОЛА ЭКОНОМИКИ»

Факультет физики

Баркалова Анастасия Сергеевна

МАГНИТОРЕЗОНАНСНЫЕ СВОЙСТВА НАНОГРАНУЛЯРНЫХ ПЛЕНОК СоFeB-LiNbO

Выпускная квалификационная работа - МАГИСТЕРСКИЙ ПРОЕКТ

по направлению подготовки 03.04.02 – Физика

образовательная программа «физика»

Рецензент

д-р физ.-мат. наук

В. В. Рыльков

Научный руководитель канд. физ.-мат. наук А.Б. Дровосеков

Москва 2020

Содержание

Введение	3
1. Образцы	5
2. Экспериментальная установка	7
3. Теоретическое описание	12
4. Результаты при комнатной температуре	17
5. Температурные зависимости положения и ширины линии ФМР	23
Заключение	33
Список литературы	35

Введение

На протяжении последних десятилетий гранулированные магнитные системы привлекали к себе внимание, благодаря своим необычным физическим свойствам, а также широкому спектру практических приложений [42, 8]. Магнитные наночастицы находят свое применение в целом ряде технологических и междисциплинарных областей, включая разработку [25], устройств хранения данных совершенствование характеристик магнитов [37], магнитно-резонансную томографию постоянных [10]. феррожидкости [41], биофизику и медицину [7].

(HK) Гранулированный металл-диэлектрический нанокомпозит $(CoFeB)_x(LiNbO_3)_{100-x}$ собой состава представляет синтетический мультиферроик, привлекающий большой интерес в связи с потенциальными эффектов [43]. возможностями нетривиальных магнитоэлектрических Недавно было показано, что данный НК является перспективным материалом с точки зрения реализации элементов резистивной памяти (мемристоров), моделирующих функции синапсов в нейроморфных сетях [33, 27]. Пленки рассматриваемого НК, осажденные методом ионно-лучевого распыления, особенность: металлическая демонстрируют интересную структурную ферромагнитная (ФМ) фаза CoFeB имеет тенденцию к образованию существенно несферических гранул внутри диэлектрической матрицы LiNbO. ΦM частицы имеют форму вытянутых нанопроволок, ориентированных в направлении роста пленки (см. Рис.1.1 и [31]). Критическая концентрация металлической фазы, при которой происходит переход изолятор-металл (ПИМ) в таком НК, оценивается как $x_c \approx 43$ ат.% [33]. Недавно было установлено, что перпендикулярная поверхностная магнитная анизотропия гранул CoFeB значительно влияет на магнитные свойства этого НК [32].

Исследования магнитной динамики в металл-диэлектрических НК привлекают внимание как с фундаментальной, так и с прикладной точек

зрения. Возможность сочетания высокого удельного сопротивления и высокой магнитной проницаемости в гранулированных системах делает их привлекательными для применения в высокочастотных микроэлектронных устройствах, таких как микросхемные индуктивные элементы и трансформаторы [36]. С другой стороны, такие структуры являются интересными модельными объектами для исследования влияния параметров отдельных частиц и межчастичных взаимодействий на динамические характеристики системы, в частности на механизмы магнитной релаксации.

В настоящей работе, гранулированные пленки (CoFeB)_x(LiNbO3)_{100-x} исследуются методом ферромагнитного резонанса (ФМР). Мы исследуем поведение ширины линии ФМР для пленок с различными концентрациями ФМ фазы, ниже и выше ПИМ $x_c \approx 43$ ат. %, чтобы пролить свет на роль межчастичных взаимодействий в механизмах магнитной релаксации.

Ранее влияние перколяции металлических гранул на характеристики ФМР исследовалось в ряде работ для различных металл-диэлектрических систем: Fe-SiO₂ [45, 20], Ni-SiO₂ [20], Co-SiO₂ [17, 18], Co-Al₂O₃ [29, 40], FeCo–Al₂O₃ [22]. В отличие от этих работ, здесь мы уделяем особое внимание концентрации области x = 44 - 48 at.%ниже порога перколяции исследуемого НК, x_p ~ 55 ат.%. В этой области было обнаружено, что температурная зависимость электропроводности подчиняется необычному логарифмическому закону в широком диапазоне температур T $\approx 10 - 200$ K [33]. Недавно было теоретически показано [9, 16], что такое поведение может быть объяснено В предположении существенного электронного гранулами. туннелирования между Ниже приводим МЫ результаты исследований особенностей ФМР в магнитных гранулированных системах в этом интересном диапазоне содержания металла вблизи ПИМ.

1. Образцы

Образцы НК (CoFeB) _x (LiNbO3) $_{100-x}$ с различными концентрациями ФМ фазы x = 27 - 48 ат. % были получены в Воронежском государственном техническом университете. Пленки осаждались методом ионно-лучевого напыления на стеклокерамических подложках с использованием мишеней исходного металлического сплава Co₄₀Fe₄₀B₂₀ и диэлектрика LiNbO₃. Толщина осажденных пленок составляла около d ~ 700 нм.

Согласно данным электронной микроскопии [33,31], пленки состоят из кристаллических гранул CoFeB, встроенных в аморфную матрицу LiNbO. Гранулы имеют вытянутую форму в направлении роста НК с поперечным размером 2-4 нм и продольным размером до 10-15 нм (Рис.1.1).



Рисунок 1.1 - Электронная микроскопия среза пленки нанокомпозита $(CoFeB)_x(LiNbO_y)_{100-x} (x \approx 48\%)$

В нашей работе мы изучали 5 образцов с различной концентрацией металлической фазы: x=27%, x=29%, x=34%, x=45, x=48%.

Данные по температурной зависимости электропроводности $\sigma(T)$, полученные в [33,31], показали для плёнок НК с концентрацией х=27%, х=29%, х=34% диэлектрический «активационный» тип проводимости,

характерный для случая изолированных гранул. Напротив, образцы с концентрацией x=45%, x=48% демонстрируют логарифмическую зависимость $\sigma(T) \sim \ln(T)$, свидетельствуя о возникновении существенного квантового межгранульного туннелирования (рис. 1.2).



Рисунок 1.2 - Проводимость образцов НК (CoFeB)_x(LiNbO_y)_{100-x} в зависимости от концентрации металлической фазы *x*. На вставках – температурные зависимости проводимости для разных *x* по данным [33,31].

2-350 К [33] Данные магнитометрии диапазоне температур В показывают наличие во всех плёнках существеного остаточного ФМ момента вплоть до максимальной температуры измерений. При этом при температурах ниже ~ 50 К проявляется также значительный вклад в намагниченность парамагнитных примесей, связанных с ионами Со и Fe, диспергированными в матрице изолятора.

2. Экспериментальная установка

Исследования ФМР проведены на лабораторном спектрометре при температурах 4.2 – 320 К в частотном диапазоне 7 – 37 ГГц в магнитных полях до 17 кЭ. Для изучения ФМ резонанса применялась экспериментальная установка, схема которой показана на рис. 2.1.



Рисунок 2.1 - Схема экспериментальной установки для наблюдения ФМ резонанса

Данные ФМР получены измерением мощности СВЧ сигнала, прошедшего через резонатор с образцом при развертке магнитного поля. Величина магнитного поля определялась с помощью датчика Холла. Прошедшее СВЧ излучение регистрировалось кристаллическим детектором, сигнал с которого поступал на АЦП (аналого-цифровой преобразователь), также как и сигнал с датчика Холла. Оцифрованная информация обрабатывалась соответствующим программным обеспечением. При проведении эксперимента по ФМ резонансу на частотах 15 – 37 ГГц использовался перестраиваемый цилиндрический резонатор, в котором возбуждались моды H_{01n}. Линии напряженности магнитного и электрического поля для моды H₀₁₁ показаны на рис.2.2. Диаметр цилиндрического резонатора 26 мм, высота изменяется в диапазоне от 10 до 30мм. Образец размещался в центре резонатора (Рис 2.3).

Для цилиндрического резонатора резонансная частота колебания типа *H_{mnp}* определяется формулой:

$$f = \frac{c}{2} \sqrt{\left(\frac{p}{l}\right)^2 + \left(\frac{q_{mn}}{\pi a}\right)^2} \tag{2.1}$$

где q_{mn} - корни производных функций Бесселя, $a=13_{MM}$ - радиус резонатора, l - длинна резонатора, которая менялась от 10 до 30 мм, с – скорость света. Таким образом расчётная наинизшая достижимая частота для моды H011 составляет f=14.96 GHz



Рисунок 2.2 - Цилиндрический резонатор и распределение в нем СВЧ электромагнитного поля для резонансной моды типа H₀₁₁. а – резонатор, б– линии напряженности электрического поля; в – линии напряженности магнитного поля.



Рисунок 2.3 - Расположение образца в цилиндрическом резонаторе

Для измерения сигнала ФМР на более низких частотах использовался прямоугольный резонатор, в котором возбуждалась одна из мод типа E1n0. Линии напряженности магнитного и электрического поля для одной из таких мод (E120) (показаны на рис. 2.4). Резонансная частота для прямоугольного резонатора определяется формулой:

$$f = \frac{c}{2} \sqrt{\left(\frac{m}{a}\right)^2 + \left(\frac{n}{b}\right)^2 + \left(\frac{p}{l}\right)^2} \tag{2.2}$$

где *m*, *n* ,*p* – числовые индексы, определяющие тип колебания, a=23 *мм*, b=38*мм*, l=10 *мм* - геометрические размеры прямоугольного резонатора [1] (рис.2.4). Расчётные значения собственных частот для мод E110, E120 и E130 равны соответственно $f_{E110} = 7.62 \ GHz$, $f_{E120} = 10.24 \ GHz$, $f_{E130} = 13.5 \ GHz$. Для измерения ФМР образец размещался на боковой стенке резонатора (*bl*).

Для обоих типов резонатора в описанной геометрии поворотом магнита в горизонтальной плоскости постоянное магнитное поле можно было ориентировать под произвольным углом к плоскости пленки. При этом СВЧ магнитное поле, возбуждающее прецессию намагниченности, направлено перпендикулярно статическому.



Рисунок 2.4 - Прямоугольный резонатор с линиями напряженности магнитного и электрического поля для моды E120.

Для стабилизации частоты СВЧ поля в процессе измерений использовался блок автоподстройки частоты (АПЧ). Для градуировки магнитного поля в резонаторе рядом с образцом помещалось реперное парамагнитное вещество с известным g-фактором g=2 [3].

Для проведения экспериментов при температурах ниже комнатной, резонатор помещался в гелиевый сосуд Дьюара, который в свою очередь погружался в жидкий азот, налитый в наружный азотный Дьюар (Рис. 2.5). Первоначально осуществлялось охлаждение установки до 77 К, после чего в гелиевый Дьюар заливался жидкий гелий для охлаждения образца до температуры 4.2 К. После выкипания гелия происходил медленный отогрев внутреннего объёма гелиевого Дьюара до температуры азотной рубашки, что позволяло провести измерения в диапазоне 4,2 – 77 К. Для стабилизации выше 77 К включался нагреватель, управляемый ПИДтемпературы регулятором. В качестве нагревателя использовалась константановая

проволока, намотанная на резонатор с образцом. Температура измерялась с помощью термопары медь-константан с точностью ~ 1–2 К.

Для получения большого отношения сигнал/шум развертка по магнитному полю проводилась несколько раз, затем полученные записи усреднялись. Параметры линии поглощения определялись путем аппроксимации кривой лоренцевского вида и линейной функцией [5].



Рисунок 2.5 - Схема установки для проведения измерений при температурах ниже комнатной.

3. Теоретическое описание

Рассмотрим тонкую ФМ пленку в постоянном магнитном поле H, приложенном под произвольным углом θ_H к плоскости (рис. 3.1). Зависимость частоты резонанса ω от поля H описывается формулой [35,23]

$$\omega = \gamma (H_X H_Y)^{1/2} \tag{3.1}$$

$$H_X = H\cos(\theta_H - \theta) - 4\pi M_{eff} \sin^2\theta \tag{3.2}$$

$$H_Y = H\cos(\theta_H - \theta) + 4\pi M_{eff} \cos 2\theta \tag{3.3}$$

где γ - магнитомеханическое отношение, $4\pi M_{\rm eff}$ – эффективное поле размагничивания плёнки. Угол выхода намагниченности из плоскости θ определяется из условия статического равновесия.

$$2Hsin(\theta_H - \theta) = 4\pi M_{eff} sin 2\theta \tag{3.4}$$



Рисунок 3.1 - Экспериментальная геометрия. Ориентация статического (H) и переменного (h) магнитных полей, а также вектора намагниченности (M) относительно плоскости плёнки.

В случае магнитного поля, ориентированного в плоскости пленки (H_{\parallel}) , либо нормально плоскости пленки (H_{\perp}) , приведенные выражения переходят в известные формулы Киттеля [4]:

$$\omega = \gamma \sqrt{H_{\parallel}(H_{\parallel} + 4\pi M_{eff})}$$
(3.5)

$$\omega = \gamma (H_{\perp} - 4\pi M_{eff}) \tag{3.6}$$

Для анализа ширины линии резонанса ∆Н обычно рассматривают вклад трех различных механизмов [35,23]:

$$\Delta H = \Delta H_G + \Delta H_2 + \Delta H_{inhom} \tag{3.7}$$

Первое слагаемое связано с локальным затуханием Гильберта и определяется выражением

$$\Delta H_G = \alpha \omega / \gamma \Xi \tag{3.8}$$

где $\Xi \approx \cos(\theta_H - \theta)$, α — параметр затухания. Согласно формуле, вклад Гильберта в ширину линии совпадает в параллельной и нормальной геометрии и имеет линейную зависимость от частоты.

Второе слагаемое описывает двухмагнонные процессы релаксации. Мы используем формулу [6,21]:

$$\Delta H_2 \approx \frac{\Gamma_{\rm TMS}}{\Xi} \arcsin \sqrt{\frac{H_x}{H_x + 4\pi M_{eff}} \frac{\cos 2\theta}{\cos^2 \theta}}$$
(3.9)

где Г_{ТМЅ} — параметр двухмагнонного рассеяния. Особенностью рассматриваемого механизма TMS является то, что он дает вклад в ширину

линии только при достаточно малых углах $\theta < 45$. В частности, это означает, что $\Delta H_2 = 0$ в нормальной геометрии, когда $\theta = \theta_H = 90^\circ$. В параллельной геометрии, формулу (3.9) можно переписать в виде:

$$\Delta H_2 = \Gamma_{\rm TMS} \cdot \arcsin \sqrt{\frac{\sqrt{4 \cdot \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 + (4\pi M)^2} - 4\pi M}{\sqrt{4 \cdot \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 + (4\pi M)^2} + 4\pi M}}$$
(3.10)

что дает приблизительно линейную зависимость ΔH_2 от частоты [21].

Для расчета третьего слагаемого, связанного с неоднородностью системы, предположим наличие в пленке случайного распределения локальных осей анизотропии (рис. 3.2). В общем случае локальные оси могут быть распределены сферически несимметрично, так что эффективные поля анизотропии отличаются в случае ориентации локальной оси в плоскости и нормально пленке ($H_{A\parallel}$ и $H_{A\perp}$ соответственно). Неоднородное уширение можно оценить по формуле

$$\Delta H_{inhom} \sim H_{max}(\boldsymbol{n}) - H_{min}(\boldsymbol{n}) \tag{3.11}$$

где $H_{max}(\mathbf{n})$ и $H_{min}(\mathbf{n})$ — максимальная и минимальная величина поля резонанса в зависимости от ориентации локальной оси анизотропии **n**. Характерной особенностью неоднородного уширения является приблизительная независимость ширины линии от частоты.



Рисунок 3.2 - Направление эффективных полей анизотропии гранул при наличии флуктуаций формы и поверхностной анизотропии.

В области низких температур наличие парамагнитных примесей в пленке может приводить к ещё одному механизму уширения линии – т. н. механизму медленной релаксации, предложенному Клогстоном [11].

Клогстоном была применена кинетическая модель к расчету ширины и ΦMP случае взаимодействия ФМ системы смещения линии В С двухуровневой релаксирующей подсистемой. В рамках рассмотренного подхода, спиновая динамика ФМ пленки может быть описана в терминах модели медленной ионной релаксации, в которой релаксирующие объекты представляют собой атомы примеси. Этот механизм учитывает модуляцию примесных уровней В окрестности теплового равновесия малыми колебаниями намагниченности, что наблюдается, например, в легированных примесями железо-иттриевых гранатах (YIG) [11, 39]. Ширина резонансной кривой в данном механизме релаксации определяется выражением:

$$2\Delta H = \frac{1}{M_0} P \frac{\omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2}$$
(3.12)

а сдвиг резонансного поля:

$$\delta H = -\frac{1}{2M_0} P \frac{(\omega \tau)^2}{1 + (\omega \tau)^2}$$
(3.13)

где множитель Р определяется:

$$P = \frac{N}{4} \left[\left(\frac{\partial (\Delta \varepsilon)}{\partial \theta} \right)^2 + \left(\frac{\partial (\Delta \varepsilon)}{\partial \phi} \right)^2 \right] \frac{1}{k_B T} \operatorname{sech}^2 \frac{\Delta \varepsilon}{2k_B T}$$
(3.14)

 θ и φ – полярный и азимутальный угол в сферической системе координат, N – концентрация примесей, M_0 – намагниченность плёнки, τ - зависящее от температуры время релаксации населенностей основного состояния парамагнитной «примеси», $\Delta \varepsilon$ — величина расщепления уровней энергии парамагнитного иона, k_B – константа Больцмана.

Заметим, что температурная зависимость множителя *P* определяется выражением:

$$P = \frac{C}{T} \operatorname{sech}^2 \frac{\Delta \varepsilon}{2k_B T}$$
(3.15)

где С – некоторый коэффициент, не зависящий от температуры.

Интересно, что отношение динамического сдвига к ширине кривой имеет простой вид:

$$\frac{\delta(H_r)}{\delta(\Delta H)} = \omega\tau \tag{3.16}$$

Это свойство, в принципе, позволяет вывести температурную зависимость времени релаксации, построив зависимость $\delta(H_r)/\delta(\Delta H)$ от *T* [2,44].

4. Результаты при комнатной температуре

На рис. 4.1 приведены резонансные спектры при комнатной температуре для образцов с различными концентрациями ФМ фазы в параллельной И перпендикулярной ориентации магнитного поля Для относительно плоскости пленки. пленок с представленными концентрациями положение максимума поглощения меняется незначительно. Рассчитанное эффективное размагничивающее поле $4\pi M_{eff}$ показывает слабое монотонное увеличение от $4\pi M_{eff} = 4.2$ kOe для x = 27% до $4\pi M_{eff} =$ 5.8 kOe для x = 48%. В то же время мы наблюдаем значительную модификацию формы линии поглощения при увеличении х. Образцы с х = 27-34%, т.е. ниже перехода металл-диэлектрик ($x_P \approx 43\%$), показывают широкие линии с заметной асимметрией, которая является признаком магнитной неоднородности пленок [26]. Образцы с х=45-48% демонстрируют наличие дополнительных пиков в форме линии поглощения.

Рис. 4.2 (а) показывает спектры ФМР для образца с x = 48%, полученные при различных углах θ_H . Видно, что дополнительные пики возникают только в непосредственной близости от нормальной геометрии. Есть два возможных объяснения этих пиков. Во-первых, они могут быть связаны с макроскопическими кластерами CoFeB, которые начинают формироваться в пленках выше перехода изолятор-металл. Тот факт, что эти пики исчезают в параллельной геометрии, может быть связан со значительным уширением этих линий, так что они не разрешаются на фоне основного пика. Отметим, что аналогичное поведение наблюдалось для гранулированных пленок Co – SiO₂ в [29].

Другим возможным объяснением дополнительных пиков в нормальной геометрии является возбуждение поверхностных мод резонанса. Такие моды могут возникать при наличии поверхностной анизотропии в случае квазиоднородных пленок с высоким содержанием ФМ фазы. Аналогичное

поведение наблюдалось, например, для гранулированных пленок Co-SiO₂ в [17].

Согласно теоретическим предсказаниям Суху [34] и Пушкарски [30], поверхностные моды могут существовать в нормальной геометрии, но исчезают, когда магнитное поле отклоняется от нормали к пленке. Такое поведение возможно при наличии поверхностной анизотропии типа легкая плоскость.



Рисунок 4.1 - Экспериментальные спектры, полученные в магнитном поле, приложенном параллельно (H_{\parallel}) и перпендикулярно (H_{\perp}) плоскости пленки для образцов с различной концентрацией FM-фазы х. Стрелки указывают на дополнительные слабые пики, возникающие выше перехода металл-изолятор

 $(x_p \approx 43\%)$. Частота СВЧ магнитного поля составляет 20,5 ГГц.



Рисунок 4.2 - а) экспериментальные спектры для НК с x = 48% в магнитном поле, приложенном под разными углами к плоскости пленки на частоте 15 ГГц. b) угловые зависимости резонансного поля для пленок с x = 27% и x = 48% на частотах 15,0 ГГц и 24,7 ГГц. c) частотно-полевые зависимости для пленок с x = 27% и x = 48% в параллельной и нормальной геометрии. На графиках (b-c) точки соответствуют экспериментальным данным, а сплошные линии – их аппроксимация.

Таблица 4.1 Параметры пленок

	$4\pi M_{eff}$	$H_{A\perp}$	$H_{A\parallel}$	α	Γ_{TMS}
	(kOe)	(kOe)	(kOe)		(kOe)
x=27%	4.2	0.32	1.03	0.018	-
x=48%	5.8	0.36	0.12	-	0.36

Рис. 4.2 (b) и рис. 4.2 (c) показывают результирующие угловые и частотные зависимости резонансного поля для образцов с x = 27% и x = 48%. Для обоих образцов поведение основного пика хорошо описывается теоретическими формулами. Небольшое расхождение между экспериментом и теорией наблюдаются только для НК с x = 27% в области низких частот в нормальной геометрии (рис. 4.2 (c)).

Это несоответствие может быть связано с неоднородностью пленки с низкой концентрацией ФМ фазы. Действительно, в этом случае, магнитное насыщение достигается только в относительно высоких полях, в то время как в малых полях $4\pi M_{eff}$ может иметь меньшую величину. Экспериментальные данные для наиболее выраженного узкого дополнительного пика, наблюдаемого в пленке с x = 48%, также показаны на рисунке. 4.2 (b) и 4.2 (c).

Полученные значения $4\pi M_{eff}$ для двух образцов приведены в табл. 4.1. Гиромагнитное отношение для обоих образцов $\gamma/2\pi \approx 2,95$ ГГц/кЭ, что соответствует g-фактору g ≈ 2.1 характерному для сплавов CoFeB [30, 12]. Стоит отметить отсутствие пропорциональной зависимости между $4\pi M_{eff}$ и концентрацией ФМ фазы. Почти двукратное уменьшение концентрации х приводит к снижению $4\pi M_{eff}$ лишь на ~30%. Таким образом, величина M_{eff} не эквивалентна намагниченности насыщения пленки M_s . Этот факт можно объяснить дополнительным анизотропным вкладом, который изменяет значение $4\pi M_{eff}$:

$$4\pi M_{eff} = 4\pi M_S + H_U \tag{4.1}$$

(1 1)

(1 2)

где H_U – эффективное поле анизотропии. На первый взгляд, дополнительный анизотропный вклад может возникать за счет анизотропии формы отдельных гранул. Согласно [14], в этом случае H_U определяется выражением

$$H_U = \Delta N_p M_0 (1 - x) \tag{4.2}$$

где M_0 – намагниченность частицы, а $\Delta N_p = N_{\perp}^p - N_{\parallel}^p$ является разницей между размагничивающими факторами гранулы для нормального и плоскостного направлений. Учитывая, что гранулы вытянуты в направлении нормали пленки, $\Delta N_p \approx -2\pi$. Таким образом, уменьшение концентрации х должно привести к более быстрому снижению $4\pi M_{eff}$. Это противоречие с экспериментом предполагает наличие еще одного анизотропного вклада легкоплоскостного Наиболее вероятным типа. источником такой анизотропии является перпендикулярная поверхностная анизотропия гранул, приводящая к предпочтительной ориентации их магнитных моментов в Эта плоскости пленки. наведенная легкоплоскостная анизотропия преобладает при низких концентрациях х, в то время как при более высоких х, она подавлена сильным ФМ обменом между гранулами.

Роль анизотропии гранул и межчастичных взаимодействий становится более ясной при сравнении поведения ширины линии ФМР ΔH в пленках с х =27% и 48%. На рис. 4.3 (а) показаны частотные зависимости ширины линии для двух образцов в параллельной и нормальной геометриях (в случае х = 48% мы анализируем только основной пик поглощения). Пленка с х = 27% демонстрирует приблизительно линейные зависимости $\Delta H(f)$ в обеих геометриях с примерно одинаковым слабым наклоном и большим смещением при нулевой частоте $f \rightarrow 0$. Такое поведение характерно для случая неоднородного уширения со слабым вкладом Гильбертова затухания

[19]. Другая ситуация наблюдается для образца с x = 48%. В этом случае ΔH не зависит от частоты в нормальной геометрии, но демонстрирует возрастающую зависимость $\Delta H(f)$ в параллельной геометрии. Такое поведение характерно для двухмагнонного механизма релаксации [24, 28].

На рис.4.3 (b) показаны угловые зависимости ширины линии для двух образцов. Здесь мы снова видим качественно различное поведение кривых $\Delta H(\theta_H)$ для пленок с разной концентрацией х. Образец с x = 48% демонстрирует четко различимое плато на зависимости $\Delta H(\theta_H)$ в окрестности $\theta_H = 90^\circ$, что является характерной чертой двухмагнонного механизма уширения линии ФМР. Отсутствие такого плато для образца с x = 27% свидетельствует о преобладании других механизмов [13].



Рисунок 4.3 - а) ширина линии ФМР как функция частоты для пленок с x = 27% и x = 48% в параллельной и нормальной геометрии. b) угловые зависимости ширины линии ФМР для пленок с x = 27% и x = 48% на частотах 15,0 ГГц и 24,7 ГГц. На графиках точки соответствуют экспериментальным данным, а сплошные линии – их аппроксимация.

5. Температурные зависимости положения и ширины линии ФМР

На рисунке 5.1 показаны температурные зависимости поля резонанса Hres(T), полученные для двух образцов (x=34% и x=48%) в геометрии «поле в плоскости» (H_{\parallel}) и «поле нормально плоскости» (H_{\perp}).



Рисунок 5.1 - Температурные зависимости поля резонанса для образцов с x=48 и 34 ат.% при различных ориентациях поля относительно плоскости пленки. Точки – эксперимент, линии – расчёт. Пунктирные линии соответствуют случаю отсутствия медленной релаксации на парамагнитных примесях.

Для обоих образцов поведение H_{res}(T) выглядит похожим образом, при этом обращает на себя внимание наличие необычного максимума в окрестности T ~ 50 – 70 K на кривых Hres(T) в геометрии «поле нормально

плоскости». В области более высоких температур ~ 70 – 300 К поле $H_{\parallel}(T)$ растет с повышением температуры, а $H_{\perp}(T)$ – падает. В соответствии с формулами Киттеля (3.5-3.6), такое поведение на качественном уровне можно объяснить простым уменьшением намагниченности плёнки с температурой. Однако при охлаждении ниже T ~ 70 К поле резонанса начинает уменьшаться в обеих экспериментальных геометриях, что невозможно объяснить на основании простых формул Киттеля [4] для тонкой ФМ плёнки. Аномальное поведение в области низких температур можно описать в предположении наличия дополнительного сдвига линии ФМР δ H, который приводит к модификации формул Киттеля:

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_{\perp} + \delta H - 4\pi M \tag{5.1}$$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_{\parallel} + \delta H)(H_{\parallel} + \delta H - 4\pi M)$$
(5.2)

Известно, что такой сдвиг линии может возникать в случае поликристаллических (либо гранулярных) образцов, а также как поправка к резонансному полю при учёте релаксации магнитных колебаний на парамагнитных примесях [2].

На основании экспериментальных данных для двух геометрий, используя формулы (5.1-5.2), можно получить температурные зависимости как величины 4π M, так и δ H. Результаты такого расчёта показаны на рисунках 5.2 и 5.3. Заметим, что полученное температурное поведение 4π M(T) описывается обычным законом (3/2) Блоха:

$$M(T) = M_0 - \alpha T^{3/2}$$
(5.3)



Рисунок 5.2 - Температурные зависимости 4πM_{eff}(T) для образцов с x=48 и 34 ат.%. Точки – эксперимент, линии – закон 3/2 Блоха.



Рисунок 5.3 - Поправка к резонансному полю бН как функция температуры для образцов с x=48 и 34 ат%. Точки – эксперимент, сплошные и штриховые линии – расчёт с учётом вклада ионной релаксации и без него.

Поправка к резонансному полю δ Н относительно медленно меняется с температурой в диапазоне $T \sim 50 - 300$ K, однако ниже ~ 50 K демонстрирует резкий рост. Именно этот рост обуславливает аномальное поведение $H_{res}(T)$ в области низких температур.

Помимо рассмотренной низкотемпературной особенности $H_{res}(T)$, зависимость ширины резонансного пика $\Delta H(T)$ в области низких температур также демонстрирует необычное поведение. При охлаждении от комнатной температуры ширина линии сначала медленно монотонно увеличивается, что обычных уширения, характерно для механизмов связанных с $\sim 30 - 40 \text{ K}$ наблюдается неоднородностями. Однако ниже сужение резонансного пика (рисунок 5.4-5.5).



Рисунок 5.4 - Экспериментальные (точки) и теоретические (линии) температурные зависимости ширины линии ФМР для образца с x=48 ат.% в нормальном и касательном поле при различных частотах (см. на графике).



Рисунок 5.5 - Экспериментальные (точки) и теоретические (линии) температурные зависимости ширины линии ФМР для образца с x=34 ат.% в нормальном и касательном поле при различных частотах (см. на графике).

Обнаруженные особенности низкотемпературного поведения $\delta H(T)$ и $\Delta H(T)$ характерны для механизма медленной релаксации на парамагнитных примесях [2, 38, 15]. Для теоретического описания экспериментальных зависимостей $\delta H(T)$ и $\Delta H(T)$ мы разделяем два вклада в ширину и сдвиг резонансного пика:

$$\delta H(T) = \delta H_0(T) + \delta H_{SPI}(T)$$
(5.4)

$$\Delta H(T) = \Delta H_0(T) + \Delta H_{SRI}(T)$$
(5.5)

Предполагается, что эффекты, связанные с неоднородностью плёнок, дают слабые температурные зависимости $\delta H_0(T)$ и $\Delta H_0(T)$, приблизительно описываемые линейными функциями в области низких температур. Напротив, механизм медленной релаксации на парамагнитных примесях приводит к существенно нелинейному поведению вкладов $\delta H_{SRI}(T)$ и $\Delta H_{SRI}(T)$ в области низких температур, описываемому формулами [4, 38]:

$$\Delta H_{SRI}(T) = F(T) \cdot \frac{\omega \tau}{1 + (\omega \tau)^2}$$
(5.6)

$$\delta H_{SRI}(T) = F(T) \cdot \frac{(\omega\tau)^2}{1 + (\omega\tau)^2}$$
(5.7)

где τ – время релаксации, зависящее от температуры *T*, а температурная зависимость функции F(T) определяется выражением

$$F(T) = \frac{C}{T} \cdot sech^2 \frac{\Delta E}{2k_B T}$$
(5.8)

где Δ*E* - величина расщепления уровней энергии парамагнитного иона, С - коэффициент, пропорциональный количеству примесей, участвующих в процессе релаксации, k_B - константа Больцмана.

Температурная зависимость времени релаксации описывается обычным «активационным» законом:

$$\tau = \tau_0 \exp(E_A/k_B T) \tag{5.9}$$

где E_A – энергия активации, $\tau_0 \sim 10^{-11}$ с – постоянная времени [39].

Экспериментальные температурные зависимости ширины и сдвига линии ФМР демонстрируют разумное согласие с теоретическими кривыми, полученными в рамках предложенного подхода (см. рисунки 5.1-5.5). Параметры для вклада, связанного с низкотемпературной релаксацией на примесях приведены в таблице 5.1.

Таблица 5.1 Параметры вклада медленной ионной релаксации для исследуемых плёнок

	x=34%	x=48%
С (ед. СГС)	$0.9\cdot 10^4$	$0.6 \cdot 10^4$
$\Delta E(\mathbf{K})$	30	20
E_A (K)	50	40

В нашем случае наблюдаемая релаксация может быть вызвана парамагнитными ионами Со и Fe, диспергированными в диэлектрической матрице LiNbO, и связанными обменным взаимодействием с ФМ гранулами CoFeB. Статическая магнитометрия исследуемых плёнок свидетельствует о наличии таких ионов, проявляющих высокую магнитную восприимчивость ниже T \approx 40 K [33]. Заметим, что этот факт согласуется с данными ФМР, демонстрирующими пик на температурной зависимости ширины линии в окрестности T \approx 40 K.

Далее рассмотрим более подробно температурную зависимость неоднородного вклада в ширину линии ФМР, который может быть получен вычетом вклада ΔH_{SRI}(T) из экспериментальных кривых ΔH(T).

Из рисунка 5.5 мы видим, что для низкой концентрации ФМ фазы x=34% ширина линии в параллельной ориентации магнитного поля слабо зависит от частоты (графики с частотой f = 7,65 GHz и f = 21,5 GHz практически совпадают во всем диапазоне температур). Такое поведение указывает на слабость вкладов гильбертова затухания и двухмагнонного рассеяния в ширину линии, т.е. в этом случае ширина линий полностью Чтобы определяется неоднородным уширением. оценить величину локальных флуктуаций поля анизотропии в плоскости пленки И перпендикулярно плоскости (НА| и НА_), мы использовали приближенные выражения для ширины линии при двух ориентациях поля, полученные из формулы (3.11):

$$\Delta H_{\parallel} \approx H_{A\parallel} \tag{5.10}$$

$$\Delta H_{\perp} \approx \frac{H_{A\parallel}}{4} + \frac{H_{A\perp}}{2} \tag{5.11}$$

На рисунке 5.6 представлены результирующие температурные зависимости величин $H_{A\parallel}$ и $H_{A\perp}$ для образца с низкой концентрацией х=34%.



Рисунок 5.6 - Температурная зависимость величины флуктуаций параллельной (*H*_A) и перпендикулярной (*H*_A) компонент эффективного поля анизотропии для образца с x=34%.

Образец с высокой концентрацией ФМ фазы х=48% демонстрирует заметное отличие в поведении температурных зависимостей $\Delta H(T)$ по сравнению с образцом х=34% (см рис. 5.4–5.5). В этом случае неоднородный вклад в ширину линии в перпендикулярной ориентации магнитного поля относительно слабо зависит от температуры. В то же время наблюдается более существенная зависимость ширины линии в параллельной геометрии как от температуры, так и от частоты. На основании этих наблюдений, можно предположить, что главными механизмами уширения линии здесь являются двухмагнонное рассеяние И неоднородное уширение, связанное С локальными флуктуациями перпендикулярной анизотропии На1. В этом случае ширина линии для двух ориентаций поля определяется формулами:

$$\Delta H_{\perp} \approx H_{A\perp}/2 \tag{5.12}$$

$$\Delta H_{\parallel} \approx \frac{1}{2} \frac{H_{res}}{2H_{res} + 4\pi M} \cdot H_{A\perp} + \Delta H_2 \tag{5.13}$$

(см. формулу 3.10 для ΔH_2). Результирующие температурные зависимости величин $H_{A\perp}$ и Γ_{TMS} представлены на рис. 5.7.



Рисунок 5.7 - Температурная зависимость параметра двухмагнонного рассеяния (Γ_{TMS}) и величины флуктуаций перпендикулярного поля анизотропии (*H*_{A⊥}) для образца с х=48%.

Из полученных вывод, обеих данных можно сделать что В исследованных пленках с понижением температуры усиливаются флуктуации величины локальной одноосной анизотропии, ориентированной в плоскости пленки. Для образца с низкой концентрацией х=34% это непосредственно выражается в монотонном увеличении параметра *H*_{A||}, а для образца с высокой концентрацией х=48% – в увеличении параметра двухмагнонного рассеяния Г_{тмs}.

Заключение

В данной работе методом ферромагнитного резонанса мы исследовали гранулярный металл-диэлектрический нанокомпозит (CoFeB)_x(LiNbO₃)_{100-x}. При комнатной температуре изучена зависимость положения и формы резонансного пика от концентрации ФМ фазы х. При изменении содержания металлической ФМ фазы и переходе границы металл-изолятор в изучаемом нанокомпозите происходит существенная модификация спектров ФМР. В наблюдается широкая несимметричная диэлектрической фазе линия поглощения, обусловленная разбросом локальной анизотропии слабовзаимодействующих гранул. При этом поверхностная анизотропия гранул играет существенную роль. В металлической фазе сильное взаимодействие между ФМ гранулами приводит к формированию магнитнооднородной пленки. В этих условиях ширина линии ФМР описывается моделью двухмагнонного рассеяния.

Обсуждаются возможные причины возникновения дополнительных пиков поглощения в нормальной геометрии для образцов с высоким содержанием ФМ фазы. Одной из вероятных причин является возбуждение в таких плёнках поверхностных спин-волновых резонансных мод, что может быть связано с появлением существенной обменной жёсткости материала плёнки при переходе в металлическую фазу.

Ha экспериментальных основании данных по температурным зависимостям ширины линии ΔH_{\parallel} и H_{\perp} , получены оценки зависимости величин локальных флуктуаций перепендикулярного и паралельного поля анизотропии от температуры, а также параметра двухмагнонного рассеяния Г_{ТМЅ}. Показано, что основную роль в уширении линии ФМР играют неоднородности, связанные с разбросом локальных осей анизотропии в плёнки. Этот эффект плоскости может определяться наличием перпендикулярной поверхностной анизотропии гранул.

В области низких температур обнаружены необычные особенности поведения ширины и сдвига линии ФМР, характерные для механизма медленной релаксации на парамагнитных примесях. Экспериментальные зависимости δH(T) и ΔH(T) согласуются с теоретическими кривыми, полученными в рамках предложенного подхода.

Статьи, подготовленные по материалам ВКР:

 "Mechanisms of FMR line broadening in CoFeB-LiNbO granular films in the vicinity of metal-insulator transition". A. Drovosekov, N. Kreines, A. Barkalova, S. Nikolaev, V. Rylkov, and A. Sitnikov.

Journal of Magnetism and Magnetic Materials 495, 165875 (2020).

 "Эффект медленной ионной релаксации при ферромагнитном резонансе в металл-диэлектрическом нанокомпозите CoFeB-LiNbO".
 А.Б.Дровосеков, Н.М.Крейнес, А.С.Баркалова, С.Н.Николаев, А.В.Ситников, В.В.Рыльков.

Письма в ЖЭТФ (принята в печать).

Список литературы

1. Богомолов Г.Д. Прикладная электродинамика: Учеб. пособие. Долгопрудный : МФТИ, 1979. 128 с.

2. Гуревич А.Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках, М, 1973.588 с.

3. Дровосеков А.Б. Исследование магнитных состояний многослойных структур Fe/Cr: дисс. канд. физико-математических наук. - М., 2008. 82 с.

4. Киттель Ч. Введение в физику твердого тела: Пер. с англ. – Физматгиз, 1963. 791 с.

5. Савицкий А.О. Ферромагнитный резонанс в многослойных структурах Fe/Cr/Gd: в.к.р. - М, 2014. 23 с.

6. Arias R., Mills D. L. Extrinsic contributions to the ferromagnetic resonance response of ultrathin films //Physical review B. T. 60, 1999. pp.7395.

7. Andrä W. et al. Chapter XX Application of Magnetic Particles in Medicine and Biology. American Cancer Society, 2007.

8. Bedanta S. et al. Magnetic nanoparticles: a subject for both fundamental research and applications //Journal of nanomaterials., T. 2013, 2013. pp. 952540.

9. Beloborodov I. S. et al. Granular electronic systems //Reviews of Modern Physics., T. 79, Apr 2007. pp. 469–518.

10. Chung S. H. et al. Biological sensors based on Brownian relaxation of magnetic nanoparticles //Applied physics letters., T. 85, № 14, 2004. pp. 2971–2973.

11. Clogston A. M. Relaxation phenomena in ferrites //The Bell System Technical Journal. T. 34, 1955. pp.739

12. Devolder T. et al. Damping of CoxFe80- xB20 ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy //Applied Physics Letters. T. 102, 2013. pp. 022407.

13. 45. Drovosekov A. B. et al. Mechanisms of FMR line broadening in CoFeB-LiNbO3 granular films in the vicinity of metal-insulator transition //Journal of Magnetism and Magnetic Materials. T. 495, 2020. pp. 165875.

14. Dubowik J. Shape anisotropy of magnetic heterostructures //Physical Review B. T. 54, 1996. pp. 1088.

15. Dubowik J. et al. Temperature dependence of ferromagnetic resonance in permalloy/NiO exchange-biased films //The European Physical Journal B-Condensed Matter and Complex Systems. T. 45, 2005. pp. 283–288

16. Efetov K. B., Tschersich A. Coulomb effects in granular materials at not very low temperatures //Physical Review B, T. 67, May 2003.pp. 174205.

17. Gómez J., Butera A., Barnard J. A. Surface anisotropy and resonance modes in Co- SiO 2 heterogeneous films //Physical Review B., T. 70, Aug 2004. pp. 054428.

18. Gómez J., Butera A. Ferromagnetic resonance line width in Co (x)–SiO2 (1- x) granular films //Physica B: Condensed Matter., T. 354, № 1, 2004. pp. 145 – 148.

19. Głowiński H. et al. CoFeB/MgO/CoFeB structures with orthogonal easy axes: perpendicular anisotropy and damping //Journal of Physics: Condensed Matter. T. 29, 2017.pp. 485803.

20. Kakazei G. N. et al. Ferromagnetic resonance in granular thin films //Journal of applied physics., T. 85, № 8, 1999. pp. 5654–5656.

21. Landeros P., Arias R. E., Mills D. L. Two magnon scattering in ultrathin ferromagnets: The case where the magnetization is out of plane //Physical Review B. T.77, 2008. pp. 214405.

22. Lesnik N. A. et al. Magnetic structure in FeCo–Al2O3 granular films studied by the ferromagnetic resonance //physica status solidi (a),T. 196, № 1, 2003. pp. 157–160.

23. Lindner J. et al. Two-magnon damping in thin films in case of canted magnetization: Theory versus experiment //Physical Review B. T.80. 2009. pp. 224421.

24. Liu X. et al. Ferromagnetic resonance and damping properties of CoFeB thin films as free layers in MgO-based magnetic tunnel junctions //Journal of Applied Physics. T. 110, 2011. pp. 033910.

25. Moser A. et al. Magnetic recording: advancing into the future //Journal of Physics D: Applied Physics., T. 35, sep 2002. pp. R157–R167.

26. Netzelmann U. Ferromagnetic resonance of particulate magnetic recording tapes //Journal of applied physics., T.68, 1990. pp.1800.

27. Nikiruy K. E. et al. Adaptive properties of spiking neuromorphic networks with synapses based on memristive elements //Technical Physics Letters., T. 45, 2019. pp. 386.

28. Okada A. et al. Magnetization dynamics and its scattering mechanism in thin CoFeB films with interfacial anisotropy //Proceedings of the National Academy of Sciences. T. 114, 2017. pp.3815.

29. Pires M. J. M. et al. Ferromagnetic resonance studies in granular Co–Si O 2 thin films //Journal of applied physics., T. 99, № 6, 2006. pp. 063908.

30. Puszkarski H. Theory of surface states in spin wave resonance //Progress in Surface Science. T. 9, 1979. pp.191.

31. Rylkov V. V. et al. Properties of nanogranular $(CoFeB)_x(AlOy)_{100-x}$ and $(CoFeB)_x(LiNbO_y)_{100-x}$ composites: Manifestation of superferromagnetic ordering effect// J. Magn. Magn. Mater., T. 459, 2018. pp. 197–201.

32. Rylkov V. V. et al. Unusual behavior of the coercive field in a (CoFeB) x (LiNbO $_{y}$) $_{100-x}$ nanocomposite with a high content of magnetic ions in an insulating matrix //Journal of Experimental and Theoretical Physics., T. 128, Jan 2019. pp. 115–124.

33. Rylkov V. V. et al. Transport, magnetic, and memristive properties of a nanogranular (CoFeB) $_x$ (LiNbO $_y$) $_{100-x}$ composite material //Journal of Experimental and Theoretical Physics., T. 126, Mar 2018. pp. 353–367.

34. Soohoo R. F. General exchange boundary condition and surface anisotropy energy of a ferromagnet //Physical Review. T. 131, 1963. pp.594.

35. Soohoo R. F. Magnetic thin films. - Harper and Row, 1965.

36. Sullivan C. R. Integrating magnetics for on-chip power: Challenges and opportunities //2009 IEEE Custom Integrated Circuits Conference., Sep. 2009. pp. 291–298.

37. Sun S. et al. Monodisperse FePt nanoparticles and ferromagnetic FePt nanocrystal superlattices //science, T. 287, № 5460, 2000. pp. 1989–1992.

38. Teale R. W., Temple D. W., Weatherley D. I. Magnetic anisotropy and magnetic anneal in silicon-doped yttrium iron garnet //Journal of Physics C: Solid State Physics T.3, 1970. pp.1376

39. Teale, R.W. in Physics of Magnetic Garnets, edited by A. Paoletti (North-Holland, Amsterdam 1978)

40. Timopheev A. A. et al. Superferromagnetism and coercivity in Co-Al2O3 granular films with perpendicular anisotropy //Journal of Applied Physics., T. 111, № 12, 2012. pp. 123915.

41. Torres-Díaz I., Rinaldi C. Recent progress in ferrofluids research: novel applications of magnetically controllable and tunable fluids //Soft matter, T. 10, 2014. pp. 8584–8602.

42. Tronc E. et al. Magnetic Properties of Fine Particles. – 1992. pp.199.

43. Udalov O. G., Beloborodov I. S. The Coulomb based magneto-electric coupling in multiferroic tunnel junctions and granular multiferroics //AIP Advances, T. 8, no. 5, 2018. p. 055810.

44. Van Vleck J. H., Orbach R. Ferrimagnetic resonance of dilute rare-earth doped iron garnets //Physical Review Letters.T.11, 1963. pp.65.

45. Wang W. N., Jiang Z. S., Du Y. W. Ferromagnetic resonance study on Fe SiO2 granular films //Journal of applied physics, T. 78, № 11, 1995. pp. 6679–6682.

46. Zakeri K. et al. Spin dynamics in ferromagnets: Gilbert damping and two-magnon scattering //Physical Review B. T.76, 2007. pp.104416.