

Ростовая перпендикулярная анизотропия гранул в наногранулярных ферромагнитных пленках Co–Al–O

© А.А. Тимофеев¹, С.М. Рябченко¹, В.М. Калита¹, А.Ф. Лозенко¹,
П.А. Троценко¹, О.В. Стогней², А.В. Ситников²

¹ Институт физики НАН Украины,
Киев, Украина

² Воронежский государственный технический университет,
Воронеж, Россия

E-mail: timopheev@iop.kiev.ua, sto@sci.vrn.ru

(Поступила в Редакцию 28 апреля 2010 г.
В окончательной редакции 6 июля 2010 г.)

Представлены результаты магнитостатических измерений наногранулярных пленок Co–Al–O в широком интервале концентраций ферромагнитной компоненты x . Выявлено формирование ростовой анизотропии гранул с легкими осями, направленными перпендикулярно плоскости пленки. Максимальное значение поля одногранулярной перпендикулярной анизотропии достигает величины ~ 2.5 кОе для образцов, находящихся вблизи порога перколяции ($x \approx 61$ at.% Co). Установлено, что для образца с $x \approx 61$ at.% сохраняются характерные особенности суперпарамагнитного поведения ансамбля ориентированных Стонер-Вольфартовских частиц в условиях присутствия поля размагничивания, обусловленного суммарной намагниченностью пленки. Исследовано и промоделировано влияние поля размагничивания пленки на форму кривых перемагничивания, коэрцитивность и температуру блокировки в таких системах. Результаты моделирования соответствуют экспериментальным результатам.

Работа выполнена при финансовой поддержке совместного гранта Украинского государственного фонда фундаментальных исследований F28/251 и РФФИ № 09-02-90460 Укр_ф_а.

1. Введение

Изучение физических свойств магнитных наноструктур является одной из актуальных задач нанозифики, поскольку переход от объемного („блочного“ в случае поликристалла) состояния к наноразмерному или наноструктурированному влечет за собой значительное изменение магнитных характеристик материала [1]. Типичным представителем магнитных наноструктур являются наногранулярные ферромагнитные пленки — композитные материалы, состоящие из ферромагнитных гранул нанометрового масштаба, внедренных в немагнитную матрицу. Широкий интерес к изучению таких объектов в большой степени связан с относительно простой и дешевой технологией их получения — ионным распылением мишеней и последующим осаждением материала на подложки. При определенных условиях формирования композита удается получать пленки с однодоменными гранулами, характеризующимися малым разбросом параметров. Кроме того, дополнительные воздействия на композит при его напылении или после формирования (например, приложение магнитного поля, отжиг уже сформированной структуры, выбор специальной геометрии источников напыления, деформация подложки и др.) позволяют вырастить образцы с ориентированной анизотропией гранул, что делает такие пленки привлекательными в качестве носителей со сверхвысокой плотностью записи информации. К факторам, ограничивающим возможности применения этих

структур, следует отнести проблему так называемого „суперпарамагнитного лимита“ [2,3], снижающего время сохранения записанной информации и требующего для преодоления этого эффекта создания большей анизотропии гранулы при меньшем ее объеме, что не всегда возможно. Вторым, не менее важным фактором является межгранулярное взаимодействие, приводящее к возникновению коллективных эффектов. И если первый фактор ограничивает минимальный размер частиц, то второй — расстояние между ними, что сказывается на достижимой плотности магнитной записи. В связи с этим создание новых типов гранулярных магнитных наноструктур с высокой анизотропией частиц и изучение межгранулярного взаимодействия в них являются важными и насущными задачами.

В наногранулярных пленках Co–Al–O, исследованных в настоящей работе, обнаружено формирование ростовой, ориентированной перпендикулярно плоскости пленки анизотропии гранул. Поле анизотропии гранул достигает большой величины в несколько кОе, что является довольно редким явлением для гранулярных пленок, не содержащих платину, наблюдавшимся лишь в нескольких работах [4–8]. Известно, что при намагничивании пленки перпендикулярно ее плоскости возникает размагничивающее поле, которое существенно сказывается на характеристиках пленочного магнетика, даже если он изотропный. Особенности влияния размагничивающего поля на характер перемагничивания суперпарамагнитного ансамбля гранул с осями легкого намаг-

ничивания, ориентированными перпендикулярно плоскости пленочного образца, на его коэрцитивное поле и температуру блокировки, недостаточно исследованные в настоящее время, оказались существенными для свойств обсуждаемых пленок. Изучению этого круга вопросов на примере упомянутых выше гранулярных систем и посвящена настоящая работа.

2. Образцы и методика эксперимента

Наногранулярные ферромагнитные пленки Co-Al-O толщиной $5 \mu\text{m}$ были получены методом ионно-лучевого распыления составных мишеней в атмосфере Ar и последующего осаждения материала на ситалловые подложки. В процессе напыления в рабочий объем добавлялся кислород с парциальным давлением $3.2 \cdot 10^{-5} \text{ Torr}$, что обеспечивало формирование оксида алюминия с близким к стехиометрическому составом. Размеры мишени ($270 \times 80 \text{ mm}$), а также ее конструкция (выплавленная кобальтовая основа, на поверхности которой несимметрично закреплялись навески из керамических пластинок Al_2O_3) позволяли в одном процессе напыления получить наногранулярные пленки с меняющимся по длине подложки содержанием ферромагнитной компоненты. Фактически доля Co в каждом участке напыленной композитной пленки зависела от его положения на подложке. После напыления подложка разрезалась на 75 поперечных ее длине полосок по 3 mm шириной каждая. При этом в пределах одной полоски состав композита варьировался не более чем на $0.5 \text{ at.}\%$. В то же время состав полосок, находящихся на противоположных краях подложки, соответствовал 36 и $75 \text{ at.}\%$ Co . Из полученных 75 полосок-образцов выбиралось пять и методом рентгеновского электронно-зондового микроанализа определялся их состав. Результаты измерений, представленные в виде зависимости состав-номер образца (его координата на подложке), аппроксимировались многочленом, что позволяло рассчитать состав любого образца (полоски) для данных условий напыления. Точность аппроксимации проверялась дополнительными методиками и, как было установлено, была не хуже $0.1 \text{ at.}\%$. Средний размер гранул, определявшийся по данным электронной микроскопии, варьировался от 2 до 6 nm в зависимости от концентрации Co . Магнитотранспортные исследования, проведенные в [9], показали, что все образцы с $x < 67 \text{ at.}\%$ демонстрируют наличие отрицательного туннельного магнитосопротивления, которое для диапазона концентраций $55 < x < 67 \text{ at.}\%$, близкого к порогу перколяции, сопровождается возникновением изотропного положительного магнитосопротивления в малых магнитных полях (о его проявлении см., например, в [10]). На основе этих данных и дополнительных методик был установлен порог перколяции в данной системе $x_p = 65-68 \text{ at.}\%$. Магнитостатические измерения проводились в интервале температур $80 < T < 300 \text{ K}$ и в диапазоне полей $\pm 10 \text{ kOe}$ на вибромагнитометре

LDJ-9500 с системой контроля и стабилизации температуры УТРЕКС-К43 с точностью $\pm 1 \text{ K}$.

3. Результаты магнитостатических измерений

Анализ результатов магнитостатических исследований гранулированных пленок $\text{Co}_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$, выполненных при намагничивании параллельно плоскости пленок при комнатной температуре, показал, что все образцы можно разбить на три группы.

1) В образцах с содержанием Co заметно ниже порога перколяции ($x < 40 \text{ at.}\%$) кривые перемагничивания соответствуют равновесному суперпарамагнитному режиму, при котором форма кривых и их наклон в нулевом магнитном поле модифицируются в зависимости от концентрации Co и температуры, при которой проводились измерения.

2) В диапазоне концентраций $44 < x < 61 \text{ at.}\%$ и небольших полях наклон зависимости намагниченности образца m , нормированной на намагниченность насыщения, m_s , от магнитного поля, приложенного в плоскости пленки, практически не зависит от concentra-

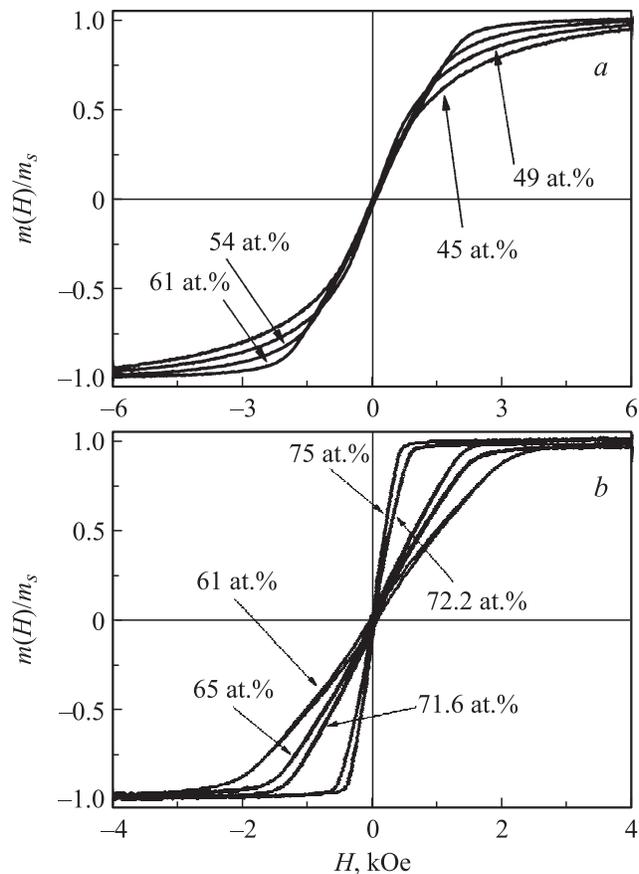


Рис. 1. Кривые перемагничивания композитов $\text{Co}_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ при ориентации внешнего магнитного поля параллельно плоскости пленки при $T = 300 \text{ K}$ для образцов с разной концентрацией магнитной компоненты.

ции Co (рис. 1, *a*) и температуры. Эта зависимость в достаточно широком интервале малых полей линейна с дальнейшим перегибом и выходом на насыщение. Диапазон полей, в которых она сохраняет линейность, возрастает по мере роста x , достигая максимального значения для $x \approx 61 \text{ at.}\%$ (рис. 1, *a, b*). При этом для образцов с $x \approx 61 \text{ at.}\%$ перегиб кривой намагничивания при переходе к насыщению является наиболее резким. Установлено, что форма кривых перемагничивания не зависит от направления магнитного поля в плоскости пленок, т.е. какая-либо заметная внутрислойная анизотропия пленок отсутствует. Таким образом, перемагничивание композитов в плоскости пленки имеет вид, типичный для намагничивания в „трудном“ направлении. Это позволяет утверждать, что у образцов данной группы имеется одноосная анизотропия с легкой осью намагничивания, перпендикулярной плоскости пленки. Отметим, что поле анизотропии, определенное из экстраполяции линейного по полю участка зависимости намагниченности в плоскости до пересечения со значением намагниченности насыщения, для образца с $x \approx 61 \text{ at.}\%$ превышает 2 kOe .

3) Для более высоких концентраций Co ($61 \text{ at.}\% < x$) кривые перемагничивания (рис. 1, *b*) сохраняют линейность в малых полях и все характерные признаки „трудного“ намагничивания. Однако эффективное поле анизотропии, определяемое упомянутым выше способом, с ростом концентрации Co уменьшается. В этом диапазоне концентраций происходит переход через порог перколяции. Поэтому снижение величины перпендикулярной анизотропии можно связать с нарастающим межгранулярным взаимодействием, которое приводит к формированию коллективного состояния. Его магнитные свойства начинают при этом доминировать над свойствами отдельных гранул.

Возникновение перпендикулярной анизотропии в гранулированных пленках с толщиной, намного большей размеров гранул, явление довольно редкое. Тем не менее в ряде работ сообщалось о наблюдении подобной анизотропии [4–8]. Самоорганизация гранулированной среды в процессе роста пленки — сложный процесс, зависящий от многих технологических параметров. Поэтому однозначное установление природы этой анизотропии требует не только характеристики, но и данных, полученных с помощью высоко разрешающей электронной микроскопии и других методов. Тем не менее на основе наших исследований можно предположить, что наиболее вероятными причинами данной анизотропии могут быть следующие.

Первая — рост столбчатой структуры в процессе формирования композита. Он может быть связан с особенностями разделения фаз при осаждении атомов. При высокой миграционной подвижности конденсирующихся атомов и значительной разнице в энергии химических связей между компонентами (имеются в виду связи Al—O и Co—O) образование столбчатой структуры весьма вероятно [11,12]. Величину магнитной анизотропии

будет при этом определять анизотропия формы гранул-столбиков или формирований в виде цепочек гранул, легкая ось намагничивания которых будет перпендикулярной плоскости пленки. Наблюдаемое изменение формы кривых перемагничивания с изменением концентрации Co (рис. 1) при ориентации поля параллельно плоскости пленки может объясняться следующим образом. В процессе роста пленок доперколяционного состава в них формируется гранулированная структура, в которой металлическая фаза Co представлена в виде образований, вытянутых перпендикулярно плоскости пленки. С ростом концентрации металлической фазы форма этих образований практически не меняется, однако увеличиваются их объем и плотность их размещения в объеме пленки. Средняя величина магнитной анизотропии гранул (столбиков, цепочек гранул) Co , обусловленная их формой при этом будет меняться незначительно, а ее дисперсия в ансамбле гранул должна уменьшаться. В результате изгиб кривой намагниченности при выходе на насыщение должен становиться более резким, что и наблюдается в эксперименте. Выше порога перколяции гранулы начинают сливаться, образуя кластеры. Это уменьшает анизотропию их формы и соответственно величину магнитной анизотропии.

Вторая возможная причина — кристаллографическая анизотропия самих гранул. Известно, что при напылении композитов Co—Al—O кристаллические гранулы Co могут иметь гексагональную структуру [13,14]. В этом случае даже при наличии разброса гранул по форме кристаллографическое поле анизотропии будет для них примерно одинаковым, как это, например, описывалось в [4]. Однако необходимо найти причину роста гранул с гексагональными осями, ориентированными перпендикулярно плоскости пленки. Возможной причиной возникновения выделенного направления этих осей могли бы быть напряжения в пленке, возникающие из-за разницы температурных коэффициентов расширения пленки и подложки. Композиты напылялись на неохлаждаемые подложки, поэтому их температура могла быть достаточно высокой (до 150°C). Охлаждение к комнатной температуре и соответствующее возникновение напряжений в связи с различием коэффициентов термического расширения может быть причиной ориентации гексагональной оси гранул перпендикулярно плоскости пленки. Вместе с тем данное предположение не позволяет объяснить наблюдаемое значение анизотропии, которое почти в 4 раза ниже, чем известное из литературы поле анизотропии гексагонального Co (9500 Oe [15]). Конечно, наноразмерность и возможная неидеальность кристаллической структуры гранул (например, присутствие ГЦК-фазы) могут снижать константу анизотропии, однако ее уменьшение в наночастицах более чем втрое по сравнению с объемным Co ранее в известной нам литературе не описывалось. Кроме того, кристаллографическая анизотропия не должна уменьшаться при росте концентрации магнитной компоненты выше порога перколяции, а именно такая зависимость обнаружива-

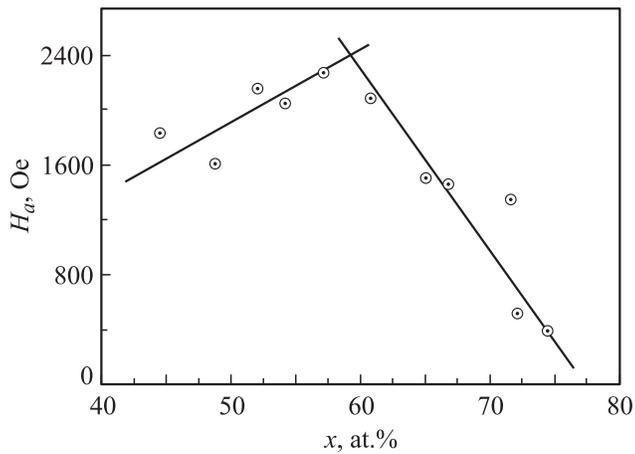


Рис. 2. Зависимость эффективного поля перпендикулярной анизотропии от содержания кобальта в пленках, определенная из данных по намагничиванию в плоскости пленки.

ется экспериментально (рис. 2). Таким образом, более вероятной причиной формирования перпендикулярной анизотропии в полученных нанокompозитах представляется рост столбчатой или цепочечной структуры. Формирование подобных структур наблюдалось в ряде работ, например, [6,16].

Далее мы покажем, что дополнительные исследования образца с $x \approx 61$ at.%, в котором величина перпендикулярной анизотропии максимальна, позволяют утверждать, что эта анизотропия обусловлена свойствами отдельных гранул (образований), а не пленки в целом. Кривые перемагничивания для ориентации поля параллельно и перпендикулярно плоскости пленки, измеренные при температуре $T = 80$ К, показаны на рис. 3, *a*, а на рис. 3, *b* приведены температурные зависимости величин коэрцитивного поля $H_{c\parallel}(T)$ и $H_{c\perp}(T)$ для этих же направлений намагничивания. Последние демонстрируют значительное возрастание коэрцитивного поля при понижении температуры, связанное с блокированием магнитных моментов отдельных гранул, как это должно быть при намагничивании суперпарамагнитного ансамбля ниже температуры блокировки T_b . Перестроение $H_{c\perp}(T)$ к зависимости вида $H_{c\perp}(\sqrt{T})$ (вставка на рис. 3, *b*) показало, что зависимость $H_{c\perp}(\sqrt{T})$ линейна. Это соответствует ожидаемой температурной зависимости коэрцитивного поля в „легком“ направлении для заблокированного ансамбля частиц с однородным направлением осей анизотропии при когерентном перемагничивании [17], которое описывается соотношением Нееля–Броуна [18]. Из сопоставления зависимости $H_{c\perp}(\sqrt{T})$ с указанным соотношением мы нашли $H_{c\perp}(T \rightarrow 0) \approx 1000$ Oe и $T_b \approx 450$ К. Величины $H_{c\perp}(T \rightarrow 0)$ и T_b позволяют оценить средний объем частиц $V_p = 2250 \cdot 10^{-21}$ cm³.

Заметим, что найденная таким образом величина $H_{c\perp}(T \rightarrow 0)$ оказалась в 2 с лишним раза меньше, чем поле перпендикулярной анизотропии, найденное из

кривых намагничивания в плоскости. Причина этого пока остается неясной. Монотонное возрастание $H_{c\perp}(T)$ с понижением температуры сопровождается некоторым возрастанием коэрцитивного поля $H_{c\parallel}(T)$ при ориентации внешнего поля параллельно плоскости пленки (рис. 3, *b*, кривая 2). Поле $H_{c\parallel}(T)$ значительно меньше, чем $H_{c\perp}(T)$, а остаточная намагниченность, связанная с ним, очень мала. Оно, скорее всего, связано или с наличием в ансамбле некоторой дезориентации направлений легких осей анизотропии гранул, или с присутствием небольшой части гранул с другим типом анизотропии.

Таким образом, наряду с явно выраженной перпендикулярной анизотропией, дающей характерную линейную зависимость намагниченности от поля при намагничивании в плоскости пленки, образец демонстрирует температурно-зависимую коэрцитивность, характерную для намагничивания суперпарамагнитного ансамбля при

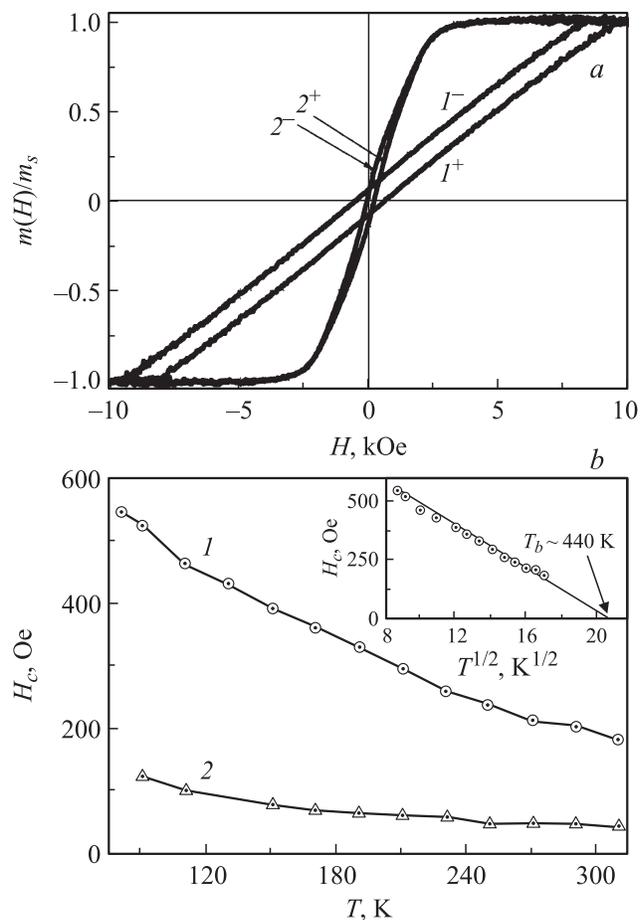


Рис. 3. *a*) Кривые намагничивания, измеренные в направлении, перпендикулярном (кривые I^+ , I^-) и параллельном (кривые 2^+ , 2^-) плоскости пленки, при $T = 80$ К для образца с $x \approx 61$ at.% Co. Кривые с индексами $+$ и $-$ получены при развертке поля в сторону его нарастания и убывания соответственно. *b*) Температурные зависимости коэрцитивного поля $H_{c\perp}(T)$ (1) и $H_{c\parallel}(T)$ (2) для этих же направлений намагничивания соответственно. На вставке — зависимость $H_{c\perp}(T^{1/2})$.

$T < T_b$. Это подтверждает, что в образцах с величиной x ниже порога перколяции перпендикулярная анизотропия связана с анизотропией отдельных гранул.

Особенностью кривых перемагничивания в магнитном поле, перпендикулярном плоскости образца (рис. 3, а, кривые I^+ , I^-), является их линейность в широком интервале полей и параллельное смещение этих линий относительно друг друга при гистерезисе. Эта особенность, как показано далее, связана с тем, что анизотропные гранулы при перемагничивании в направлении, перпендикулярном плоскости пленки, т.е. вдоль их легких осей намагничивания, подвергаются действию не только внешнего магнитного поля, но и поля размагничивания всей пленки как целого. Последнее имеет коллективную природу в отличие от поля анизотропии гранул. Таким образом, особенности перемагничивания суперпарамагнитного ансамбля в данном случае определяются сочетанием одногранульного и коллективного эффектов. Иными словами, форму кривых гистерезиса при перемагничивании пленки перпендикулярно ее плоскости определяют два основных фактора: температурно-зависимое коэрцитивное поле, связанное с блокировкой магнитных моментов наночастиц, и магнитостатическое поле размагничивания, влияющее на кинетику перемагничивания. Нам неизвестен достаточно полный теоретический анализ данной ситуации, позволяющий описать полученные экспериментальные результаты. Поэтому далее мы рассмотрим модельную систему, учитывающую основные свойства наногранулярных пленок с перпендикулярной их плоскости анизотропией гранул, и проведем расчеты перемагничивания такой системы в поле, перпендикулярном плоскости пленки.

4. Модель

Про моделируем процессы перемагничивания в ансамбле одноосных однодоменных частиц, помещенных во внешнюю оболочку в виде тонкой пленки и ориентированных легкими осями анизотропии перпендикулярно плоскости этой пленки, в условиях действия размагничивающего поля, связанного со средней намагниченностью пленки и ее факторами размагничивания. Будем рассматривать наиболее простой случай внешнего магнитного поля, приложенного в направлении легкой оси анизотропии гранул и их когерентное перемагничивание, без учета возможности перемагничивания отдельных гранул через магнитно-неоднородные состояния. Не будем учитывать также возможное неоднородное поле межгранульного взаимодействия ближайшего окружения. Как показано далее, этого будет достаточно для установления качественного соответствия с данными эксперимента. Для описания задачи используются следующие приближения.

1) Будем полагать, что частицы однодоменны, с одноосной анизотропией и одинаково ориентированными легкими осями намагничивания, т.е. будем рассмат-

ривать ансамбль ориентированных Стонер-Вольфартовских (СВ) частиц [17].

2) Влияние температуры на процессы перемагничивания в ансамбле учтем в приближении термоактивационной модели Нееля [18].

3) Процесс перемагничивания ансамбля гранул в поле, направленном вдоль их легких осей, опишем в рамках модели дискретных ориентаций [18], полагая, что магнитные моменты частиц могут быть ориентированы только вдоль направлений, соответствующих локальному или глобальному минимумам магнитной энергии частицы. В нашем случае это будут две дискретные ориентации: вдоль или против внешнего магнитного поля. В такой двухуровневой модели намагниченность ансамбля задается населенностями этих уровней, а вероятность релаксации намагниченности для двухъямного потенциала с конечным барьером описывается законом Аррениуса.

4) Величину намагниченности и поля размагничивания (считая его однородным) в заданном внешнем поле будем определять самосогласованно, используя кинетическое уравнение (уравнение баланса).

Вопросы применимости приближения 1–3 обсуждались нами и другими авторами ранее [19–21]. При этом было показано, что для моделирования кривых перемагничивания с типичными для магнитостатических измерений временами измерений данные приближения оправданы. Приближение 4 обосновано далее.

Плотность энергии одной СВ-частицы в магнитном поле, направленном вдоль ее оси легкой намагничивания, будет иметь вид

$$U = -K \cos^2(\theta) - m_p H_i \cos(\theta), \quad (1)$$

где K — константа одноосной магнитной анизотропии, m_p — намагниченность однодоменной частицы, θ — угол между направлением магнитного момента частицы и внутренним магнитным полем H_i , действующим на эту частицу в ансамбле, $\mathbf{H}_i = \mathbf{H}_{\text{ext}} - \hat{N}\mathbf{m}$, \mathbf{H}_{ext} — приложенное внешнее поле, \hat{N} — тензор размагничивания образца (в данном случае ансамбля СВ-частиц с внешними границами в виде тонкой пленки), \mathbf{m} — вектор средней по ансамблю намагниченности. Для удобства вычислений нормируем U , поделив левую и правую сторону (1) на K ,

$$U_{\text{red}} = -\cos^2(\theta) - 2h \cos(\theta), \quad (2)$$

где $h = H_i m_p / (2K)$ — безразмерное внутреннее магнитное поле, действующее на каждую частицу в ансамбле. Введем безразмерную температуру $T_{\text{red}} = kT / (KV_p)$ (T — абсолютная температура, k — константа Больцмана, V_p — объем частицы) и безразмерное время измерения $t_{\text{red}} = \nu_0 t_{\text{exp}}$, равное произведению реального времени измерения t_{exp} на параметр „частоты проб“ в законе Аррениуса ν_0 , который для типичных магнитных частиц лежит в интервале $10^8 - 10^{12} \text{ s}^{-1}$. Безразмерное (умноженное на ν_0) время релаксации τ , намагниченности в ансамбле будет определяться законом Аррениуса

с учетом возможных переходов между ориентациями момента частицы как с нижнего уровня на верхний, так и наоборот

$$\tau_r = \left(\exp\left(-\frac{(h-1)^2}{T_{\text{red}}}\right) + \exp\left(-\frac{(h+1)^2}{T_{\text{red}}}\right) \right)^{-1}. \quad (3)$$

Определение понятия реального времени измерения t_{exp} для магнитоэлектрических экспериментов обсуждалось нами ранее [20].

Уравнение, связывающее скорость релаксации намагниченности ансамбля m , нормированной на его намагниченность насыщения m_s , $M(T_{\text{red}}, h, t_r) = m(T_{\text{red}}, h, t_r)/m_s$, время релаксации $\tau_r(T_{\text{red}}, h)$ и разницу между равновесной M_∞ (при заданных h и T_{red}) и текущей нормированными намагниченностями $M_\infty - M(t)$, имеет вид (здесь $t_r = t \nu_0$ — безразмерное время, а t — реальное)

$$\frac{\partial M(t_r)}{\partial t_r} = \frac{1}{\tau_r} [M_\infty - M(t_r)]. \quad (4)$$

Вид уравнения (4) не зависит от нормировки величин намагниченностей M_∞ и $M(t_r)$ и нормировки времени. Заметим, что введенная выше нормированная намагниченность ансамбля равна средней по ансамблю намагниченности гранул, нормированной на намагниченность одиночной гранулы, а $m_s = m_p f_v$, где f_v — величина относительного заполнения объема пленки гранулами.

В модели дискретных ориентаций равновесная намагниченность будет определяться функцией Бриллюэна для двухуровневой системы

$$M_\infty = \text{th} \left[\frac{2h}{T_{\text{red}}} \right]. \quad (5)$$

Влияние размагничивающего поля для ансамбля в форме пленки с одноосными гранулами, ориентированными легкими осями перпендикулярно ее плоскости, и во внешнем магнитном поле, приложенном в направлении этих легких осей (обозначим его z), можно описать в приближении самосогласования. В самом деле, внутреннее магнитное поле, действующее на каждую гранулу в ансамбле, равно $h = h_{\text{ext}} - N_{zz}^{\text{norm}} M f_v$, где h_{ext} — внешнее магнитное поле, N_{zz}^{norm} — нормированная, как и остальные величины в данном рассмотрении, компонента тензора размагничивания для намагничивания ансамбля перпендикулярно плоскости $N_{zz}^{\text{norm}} = N_{zz} m_p^2 / 2K$, где $N_{zz} = 4\pi$ для случая пленки. Учитывая, что N_{zz}^{norm} и f_v являются постоянными параметрами ансамбля, сведем их к одному параметру: $\lambda = -f_v N_{zz}^{\text{norm}}$ (заметим, что $\lambda \leq 0$). Таким образом, на каждую гранулу в ансамбле кроме внешнего магнитного поля h_{ext} будет действовать поле размагничивания, пропорциональное текущей средней намагниченности ансамбля. Для моделирования кривых перемагничивания свяжем изменение внешнего магнитного поля h_{ext} линейно со временем t_r (как это делалось в [20]), рассматривая режим перемагничивания с постоянной скоростью развертки поля:

$h_{\text{ext}}(t_r) = C(t_r / (C t_{\text{reg}}) - 1)$, где C — ширина области развертки магнитного поля, а t_{reg} — „время измерения“, т. е. время, необходимое для развертки интервала магнитных полей, равного полю одногранульной анизотропии. Тогда

$$h(t_r) = h_{\text{ext}}(t_r) + \lambda M(t_r). \quad (6)$$

Заметим, что в этом случае M_∞ тоже становится функцией времени.

Уравнение (4) с учетом (3), (5) и (6), так же как в [20,21], будем решать численно, начиная развертку из отрицательного насыщающего магнитного поля так, чтобы выполнялось начальное условие $M(t_r = 0, h = -C) = -1$.

5. Обсуждение результатов

На рис. 4, *a* показан результат расчета модификации кривых перемагничивания ансамбля в заблокированном состоянии для разных значений параметра λ . Видно, что расчетные кривые перемагничивания качественно соответствуют экспериментальной кривой для намагничивания перпендикулярно плоскости пленки (рис. 3, *a*).

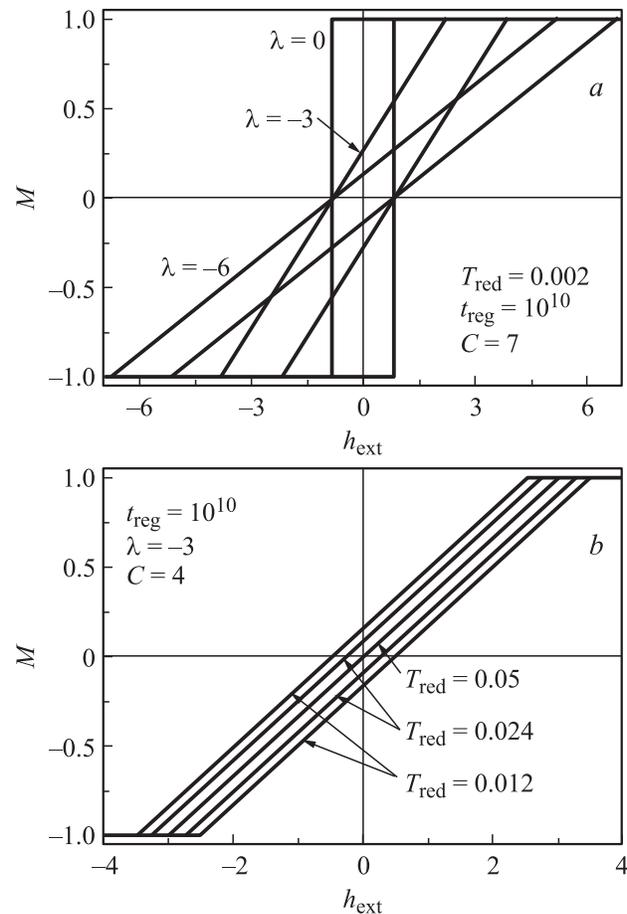


Рис. 4. Модельные кривые перемагничивания для разных значений λ (*a*) и температурная модификация кривых перемагничивания при фиксированном значении λ (*b*).

Влияние поля размагничивания приводит к характерному „наклону“ петель гистерезиса и небольшому (не заметному в масштабе рис. 4, *a*) уменьшению коэрцитивного поля. Выше температуры блокировки, где это поле практически нулевое, процесс перемагничивания осуществляется равновесно. Кривые имеют типичный Z-образный вид с резким переходом намагниченности к насыщению в поле $|h_{\text{ext}}| = |\lambda < 0|$ (рис. 4, *b*, кривая для $T_{\text{ext}} = 0.05$, которая для выбранных параметров расчета превышает безразмерное значение температуры блокировки T_b^r). Понижение температуры приводит к возникновению коэрцитивного поля и параллельному смещению точек выхода на насыщение относительно поля $|h_{\text{ext}}| = |\lambda < 0|$ на величину этого коэрцитивного поля, зависящую от температуры. Аналогичное поведение с изменением температуры наблюдается и в эксперименте.

Заметим, что в отсутствие обменной связи между гранулами энергетически выгодному равновесному состоянию системы с анизотропией гранул, перпендикулярной плоскости пленки, в нулевом внешнем поле будет соответствовать равновероятная параллельная и антипараллельная нормали к пленке ориентация магнитных моментов гранул ансамбля. Никакой намагниченности у пленки не будет. Приложение поля вдоль нормали к пленке создает намагниченность и соответственно поле размагничивания. При этом величина одногранулярной анизотропии при равновесном намагничивании (т.е. при $T > T_b$) практически не будет влиять на полевое положение точки выхода намагниченности на насыщение, соответствующее $4\pi m_s$. Как при $T > T_b$, так и при $T < T_b$ рост намагниченности с полем будет происходить за счет термоактивированных переориентаций магнитных моментов отдельных гранул, а не за счет „подкоса“ совокупной намагниченности ансамбля к направлению поля. Таким образом, в гранулярной пленке с перпендикулярной анизотропией гранул, несмотря на то что анизотропия фактора размагничивания, казалось бы, диктует при $4\pi m_s > H_{a\perp}$ легкоплоскостную анизотропию, компонента намагниченности ансамбля, лежащая в плоскости, может создаваться только проекцией внешнего поля на плоскость.

Температурная зависимость рассчитанного в данной модели коэрцитивного поля для намагничивания ансамбля с $\lambda \rightarrow 0$, построенная в виде $h_c(\sqrt{T_{\text{red}}})$, линейна и следует хорошо известному соотношению Нееля–Броуна [18] ($h_c(T_{\text{red}}) = 1 - \sqrt{T_{\text{red}}/T_b^r}$). Экстраполяция зависимости $h_c(\sqrt{T_{\text{red}}})$ до пересечения с осью температур в $h_c = 0$ дает значение корня из температуры блокировки ансамбля ($\sqrt{T_b^r}$). Увеличение (по модулю) параметра λ приводит к небольшому уменьшению T_b^r . При этом, как видно из рис. 5, зависимости $h_c(\sqrt{T_{\text{red}}})$ сохраняют линейность. Такое поведение $h_c(\sqrt{T_{\text{red}}})$ не просто связано с перенормировкой времени изменения, а скорее, отражает временной (из-за протяжки поля) характер изменения внутреннего поля на частице, в

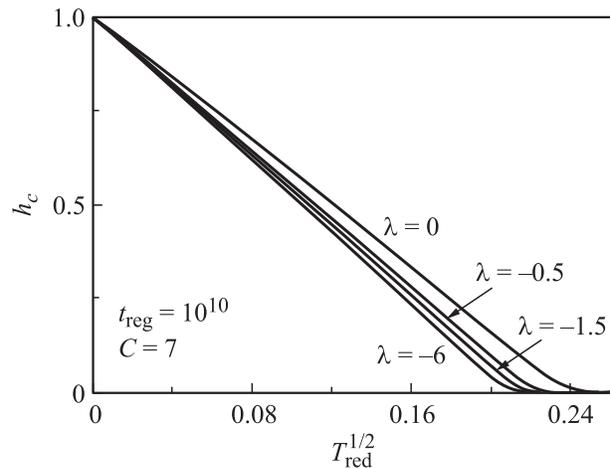


Рис. 5. Расчетные температурные зависимости коэрцитивного поля для различных значений λ .

котором и происходит термоактивационная релаксация. Температурная зависимость $H_{c\perp}$ (для намагничивания перпендикулярно плоскости пленки) образца с $x \approx 61$ at.% Co (кривая 1 на рис. 3, *b*) в шкале $H_{c\perp}(\sqrt{T})$ показана на вставке к рис. 3, *b*. Видно, что зависимость $H_{c\perp}(\sqrt{T})$ линейна, соответствуя расчетным данным рис. 5, и позволяет провести оценку температуры блокировки и объема частиц, описанную ранее. Таким образом, результаты моделирования качественно согласуются с экспериментальными.

Для рассмотрения особенностей характера изменения внутреннего поля на частице в условиях ее „индивидуальной“ перпендикулярной анизотропии и действия „коллективного“ поля размагничивания пленки как целого мы провели измерения и анализ частных петель гистерезиса пленки. Такие кривые при намагничивании перпендикулярно плоскости пленки для температур ниже T_b показаны на рис. 6, *a*. Как видно, частные петли гистерезиса сохраняют свое коэрцитивное поле и остаточную намагниченность при значительном уменьшении диапазона развертки магнитного поля (от ± 10 до ± 2.5 kOe). Результаты моделирования, показанные на рис. 6, *b*, подтверждают, что обсуждаемая модель дает такое же поведение расчетных кривых. Важно, что действие размагничивающего поля сводится не просто к перенормировке действующего на частицы магнитного поля, а и к заметно отличающемуся ходу релаксации намагниченности в ансамбле. На рис. 7, *a, b*, приведено построение кривых перемагничивания (показанных на рис. 6, *b*) во „внутреннем“ поле $h = h_{\text{ext}} + \lambda M$ (рис. 7, *a*) и моделирование кривых перемагничивания для $\lambda \rightarrow 0$ (когда „внутреннее“ поле равно внешнему) с интервалами развертки магнитного поля, соответствующими интервалам развертки внутреннего поля для кривых, показанных на рис. 7, *a*. Как видно, рис. 7, *a* и *b* демонстрируют разные формы кривых. Примечательно, что если на рис. 6, *a, b* величины остаточной намагничен-

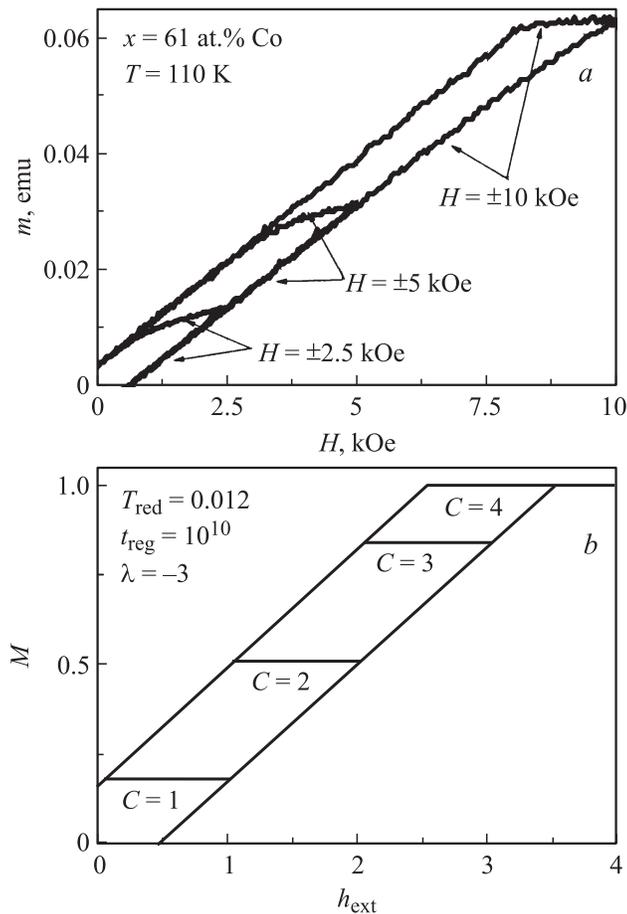


Рис. 6. Экспериментальные кривые перемагничивания для различных величины интервала развертки магнитного поля при $T = 110\text{ K}$ (*a*) и результаты моделирования (*b*). Для обеих частей рисунка показан один квадрант петли гистерезиса.

ности не меняются при изменении интервала развертки поля, то на рис. 7, *a, b* они при этом меняются. Данное обстоятельство связано с тем, что нулевое внешнее поле при наличии поля размагничивания не соответствует нулевому внутреннему. Поэтому „остаточная намагниченность во внутреннем поле“ соответствует значениям намагниченности частных петель рис. 6, *a, b* на участках ее постоянства сразу после смены направления развертки магнитного поля. Отметим, что остаточная намагниченность во внутреннем поле в расчете рис. 7, *b* (при наличии поля размагничивания, $\lambda \neq 0$) падает с уменьшением диапазона развертки поля значительно быстрее в сравнении с ее линейным уменьшением для случая рис. 7, *a* ($\lambda = 0$). Уравнение (3) в случае $\lambda \neq 0$ является функцией не только магнитного поля, но и текущей намагниченности, что и приводит к заметному изменению формы кривых перемагничивания и остаточной намагниченности во внутреннем поле в зависимости от λ . Детальное рассмотрение влияния размагничивающего поля на релаксацию намагниченности в таких системах будет проведено отдельно.

Заметим, что в рамках изложенного выше не анализировалось влияние дисперсии частиц по параметру анизотропии, пространственной ориентации легких осей и объему на форму кривых перемагничивания и их температурную модификацию. Эти факторы можно учесть введением нескольких подансамблей с соответствующими весовыми коэффициентами и с совокупной намагниченностью ансамбля, создающей одно и то же суммарное поле размагничивания на каждом из подансамблей. Такой анализ будет описан отдельно. Однако достаточно хорошее качественное соответствие результатов эксперимента и модельных расчетов, сделанных без учета такой дисперсии, позволяет полагать, что дисперсия по параметрам гранул в образце с содержанием 61 at.% Co невелика. Остается открытым вопрос о природе перпендикулярной анизотропии в исследуемых пленках. Мы надеемся, что дополнительные исследования микроструктуры данных пленок, которые планируются, позволят его решить.

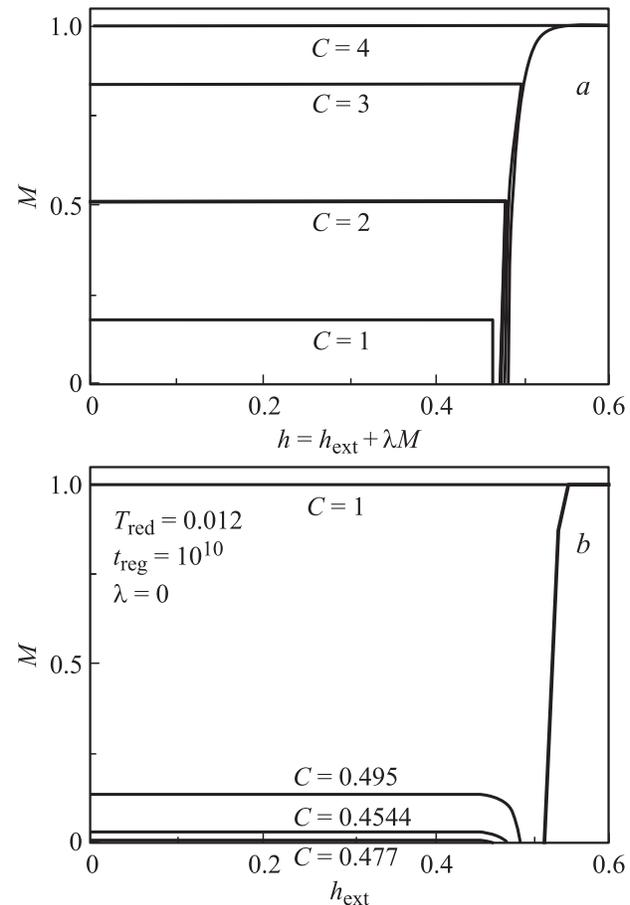


Рис. 7. Модельные кривые перемагничивания (рис. 6, *b*), построенные в координатах внутреннего поля (*a*), и модельные кривые перемагничивания с $\lambda \rightarrow 0$ для диапазонов развертки полей, соответствующих интервалам изменения внутреннего поля, показанным на части *a* (*b*). Для обеих частей рисунка показан один квадрант петли гистерезиса.

6. Заключение

В работе исследованы магнитные свойства наногранулярных ферромагнитных пленок Co-Al-O , полученных методом ионно-лучевого распыления. Обнаружено формирование в них ростовой, ориентированной перпендикулярно плоскости пленки анизотропии гранул, эффективное поле которой достигает величины ~ 2.5 кОе для образца с $x \approx 61$ at.% Co. Температурные исследования показали, что данный образец сохраняет основные признаки суперпарамагнитного ансамбля с температурой блокировки ≈ 450 К, но особенности его перемагничивания модифицированы присутствием коллективного эффекта — поля размагничивания пленки, возникающего при намагничивании пленки в направлении, перпендикулярном ее плоскости. Проведены модельные расчеты для ансамбля гранул, имеющего форму пленки и магнитную анизотропию гранул, ориентированную перпендикулярно плоскости пленки, в приближении ансамбля Стонер-Вольфартовских частиц с ориентированной одноосной анизотропией и полем размагничивания ансамбля, возникающим при намагничивании вдоль оси этой анизотропии. Установлено, что для намагничивания вдоль легких осей гранул температурная зависимость коэрцитивного поля следует закону Нееля–Броуна, как и для ансамбля без поля размагничивания, а влияние размагничивающего поля приводит к незначительному понижению температуры блокировки ансамбля. Показано, что в данных системах ниже температуры блокировки частные петли гистерезиса сохраняют свою форму, величину коэрцитивного поля и остаточной намагниченности в широком диапазоне разных интервалов развертки магнитного поля. Результаты модельных расчетов демонстрируют хорошее качественное соответствие экспериментальным данным, полученным на образце с максимальной одногранулярной анизотропией, что показывает применимость к его описанию приближения, использованного для расчетов и моделирования.

Список литературы

- [1] C.L. Chien. *Ann. Rev. Mater. Sci.* **25**, 129 (1995).
- [2] V. Skumryev, S. Stoyanov, Y. Zhang, G. Hadjipanayis, D. Givord, J. Nogues. *Nature* **432**, 850 (2003).
- [3] X. Sun, Y. Huang, D.E. Nikles. *Int. J. Nanotechnol.* **1**, 328 (2001).
- [4] Y.J. Chen, T. Suzuki, H. Kanazawa. *J. Appl. Phys.* **87**, 4837 (2000).
- [5] T. Shimatsu, Y. Inaba, S. Watanabe, O. Kitakami, S. Okamoto, H. Aoi, H. Muraoka, Y. Nakamura. *IEEE Trans. Magn.* **43**, 2103 (2007).
- [6] Y. Sun, W. Li, P. Dhagat, C.R. Sullivan. *J. Appl. Phys.* **97**, 10N301 (2005).
- [7] N.A. Tuan, N.H. Luong, N. Chau, V.V. Hiep, N.M. Ha. *Physica B* **327**, 400 (2003).
- [8] J.Q. Xiao, C.L. Chien, A. Gavrin. *J. Appl. Phys.* **79**, 5309 (1996).
- [9] О.В. Стогней, А.В. Ситников, Ю.Е. Калинин, С.Ф. Авдеев, М.Н. Копытин. *ФТГ* **49**, 158 (2007).
- [10] А.А. Тимофеев, С.М. Рябченко, А.Ф. Лозенко, П.А. Троценко, О.В. Стогней, А.В. Ситников, С.Ф. Авдеев. *ФНТ* **33**, 1282 (2007).
- [11] В.М. Иевлев. Тонкие пленки неорганических материалов: механизм роста и структура. Плиграф. центр ВГУ, Воронеж (2008). 496 с.
- [12] А.В. Ситников. Электрические и магнитные свойства наногетерогенных систем металл–диэлектрик. Автореф. докт. дис. ВГУ, Воронеж (2010). 32 с.
- [13] M. Ohnuma, K. Hono, E. Abe. *J. Appl. Phys.* **82**, 5646 (1997).
- [14] K. Yakushiji, S. Mitani, K. Takanashi. *J. Magn. Magn. Mater.* **212**, 75 (2000).
- [15] С.В. Вонсовский. *Магнетизм. Наука, М.* (1971). 1032 с.
- [16] C. Chen, R. Sakurai, M. Hashimoto, J. Shi, Y. Nakamura. *Thin Solid Films* **459**, 200 (2004).
- [17] E.C. Stoner, E.P. Wohlfarth. *Phil. Trans. R. Soc. London A* **240**, 599 (1948).
- [18] L. Neel. *Ann. Geophys.* **5**, 99 (1949).
- [19] М.А. Чуев. Письма в *ЖЭТФ* **85**, 744 (2007).
- [20] А.А. Тимофеев, В.М. Калита, С.М. Рябченко. *ФНТ* **34**, 560 (2008).
- [21] А.А. Timopheev, S.M. Ryabchenko, V.M. Kalita, A.F. Lozenko, P.A. Trotsenko, V.A. Stephanovich, A.M. Grishin, M. Munakata. *J. Appl. Phys.* **105**, 083 905 (2009).