

05,12

## Обменное смещение на границе ферро-ферритмагнетик в микропроводах PrDyCoFeB/ $\alpha$ -Fe

© О.В. Коплак<sup>1,2</sup>, Е.В. Дворецкая<sup>1</sup>, Д.В. Королев<sup>3</sup>, Р.А. Валеев<sup>3</sup>, В.П. Пискорский<sup>3</sup>, М.В. Гапанович<sup>1</sup>, Ю.С. Погорелец<sup>1</sup>, Р.Б. Моргунов<sup>1-3</sup>

<sup>1</sup> Институт проблем химической физики, Черноголовка, Россия

<sup>2</sup> Первый московский государственный медицинский университет им. И.М. Сеченова, Москва, Россия

<sup>3</sup> Всероссийский институт авиационных материалов, Москва, Россия

E-mail: o.koplak@gmail.com

Поступила в Редакцию 13 мая 2021 г.

В окончательной редакции 13 мая 2021 г.

Принята к публикации 13 мая 2021 г.

Обнаружено обменное смещение 50–70 Ое в двухкомпонентных микропроводах двух типов: 1) с оболочкой  $\alpha$ -Fe, напыленной на нанокристаллическое ядро PrDyCoFeB и 2) с нанокристаллической оболочкой PrDyCoFeB и ядром  $\alpha$ -Fe, самопроизвольно сформированным в процессе затвердевания расплава. При этом обменное смещение не обнаруживается в покрытых  $\alpha$ -Fe микрокристаллических микропроводах, преимущественно состоящих из фазы (PrDy)<sub>2</sub>(CoFe)<sub>14</sub>B. Поскольку в нанокристаллических микропроводах помимо этой фазы имеются ферритмагнитные фазы Dy(CoFe)<sub>2</sub> или Dy(CoFe)<sub>4</sub>B, возникновение обменного смещения объясняется наличием интерфейса  $\alpha$ -Fe с этими фазами.

**Ключевые слова:** ферромагнитные микропровода, магнитная анизотропия, размагничивающий фактор, намагниченность насыщения, интерфейс.

DOI: 10.21883/FTT.2021.10.51399.112

### 1. Введение

Многослойные ферромагнитные микропровода являются удобными объектами для создания и исследования новых магнитных состояний на границе между материалами разных типов. В частности, в двуслойных микропроводах на основе переходных металлов FeSi, FeCoSi и др. были обнаружены эффекты переключения взаимных направлений намагниченности ядра и оболочки, а также эффекты обменного смещения [1–5]. Кроме обменного взаимодействия, действующего на интерфейсе, в двухслойных микропроводах имеет место магнитное дипольное взаимодействие между ядром и оболочкой, способное приводить к таким же феноменологическим проявлениям в полевых зависимостях намагниченности, что и при обменном взаимодействии [6,7]. Разделение этих эффектов представляет собой непростые экспериментальные исследования. Представляется важным проверка роли интерфейса в микропроводах на основе RE-TM-B. В [8] сообщалось о получении микропроводов Ta/NdFeB, однако отсутствие ферромагнитных или антиферромагнитных свойств у Ta делает задачу получения новых функциональных свойств микропроводов безнадёжной. В [9] были представлены свойства микропроводов PrDyFeCoB, в которых при сверхбыстром охлаждении самопроизвольно образовывалась фаза  $\alpha$ -Fe в виде ядра, окруженного оболочкой аморфно-кристаллического сплава PrDyFeCoB. При этом в [10] сообща-

лось об идентификации обменного смещения и ступенчатом переключении намагниченности, обусловленном поочередной переориентацией намагниченностей ядра и оболочки микропровода. Контакт металлов с антиферромагнитным обменом (как в PrDyFeCoB) с ферромагнетиком часто приводит к появлению неколлинеарной намагниченности и обменного смещения [11], формирование которого в таких системах все еще остается не до конца объясненным. Обменное смещение петли гистерезиса в [10] может быть обусловлено неколлинеарной ориентацией спинов на интерфейсе ферромагнетика  $\alpha$ -Fe и ферритмагнетика PrDyFeCoB. Доказательством обменного (а не магнитного дипольного) происхождения смещения петли гистерезиса в [10] послужила зависимость поля смещения петли от величины поля, в котором охлаждали образец до 2 К. Наличие такой убывающей зависимости (поле смещения направлено против внешнего поля) и смена знака поля смещения  $H_b$  при смене знака поля, в котором происходило охлаждение, указывают на обменное взаимодействие на интерфейсе  $\alpha$ -Fe/PrDyFeCoB. Вместе с тем, помимо ядра Fe и его интерфейса с оболочкой источниками обменного смещения могли быть интерфейсы различных фаз, формирующихся в виде включений в аморфном микропроводе. В процессе быстрого охлаждения помимо ферритмагнитной фазы 2-14-1 в микропроводах формируются также фазы 1-4-1, 1-2 и др. Это делает неясным, интерфейс железа с какой из фаз приводит к появлению

обменного смещения. Проверкой источника обменного смещения в данной работе является эксперимент, в котором сравнивается обменное смещение в микропроводе без железных включений с тем же микропроводом, на который напылен слой железа. Кроме того, при различных режимах охлаждения возникают разные фазовые составы микропровода: медленное охлаждение ведет к преимущественному появлению сравнительно крупных микрокристаллов фазы 2-14-1, а быстрое охлаждение ведет к образованию нанокристаллической и аморфной структуры с фазами 2-14-1, 1-2 и 1-4-1 [12,13]. Поэтому создание интерфейса железа с разными типами микропроводов поможет ответить на вопрос, на каком именно интерфейсе возникает обменное смещение. В настоящей работе мы предприняли попытку напыления слоя поликристаллического  $\alpha$ -Fe на микропровода PrDyFeCoB с высокой и небольшой долей фазы 2-14-1.

Цель настоящей работы заключалась в установлении источника обменного смещения путем сравнительного анализа поля обменного смещения в микропроводах с разным порядком следования PrDyFeCoB и  $\alpha$ -Fe, а также при разном фазовом составе PrDyFeCoB, заранее сформированном заданным режимом охлаждения сплава.

## 2. Методика и образцы

В опытах использовали 4 типа образцов: 1) микропровода с нанокристаллической оболочкой PrDyFeCoB, где включения  $\alpha$ -Fe возникают самопроизвольно в процессе затвердевания расплава; 2) микропровода с нанокристаллическим ядром PrDyFeCoB и преднамеренно напыленной оболочкой  $\alpha$ -Fe; 3) микропровода с микрокристаллическим ядром PrDyFeCoB и доминирующей фазой 2-14-1, покрытых  $\alpha$ -Fe, 4) нанокристаллические микропровода PrDyFeCoB не содержащие оболочки или включений железа.

Методика изготовления микропроводов с аморфно-нанокристаллической структурой, основана на сверхбыстром охлаждении капли расплава PrDyFeCoB на вращающемся холодном диске с линейной скоростью вращения 55 m/s, подробно описана в статьях [2–5], где также был проведен их структурно-химический анализ. Тем же способом были приготовлены микрокристаллические микропровода, но затем они подвергались вакуумному отжигу при 900°C в течение 30 min. В аморфно-нанокристаллических микропроводах присутствовали включения фаз 2-14-1, 1-2, 1-4-1, в то время, как в микрокристаллических микропроводах доминировала фаза 2-14-1.

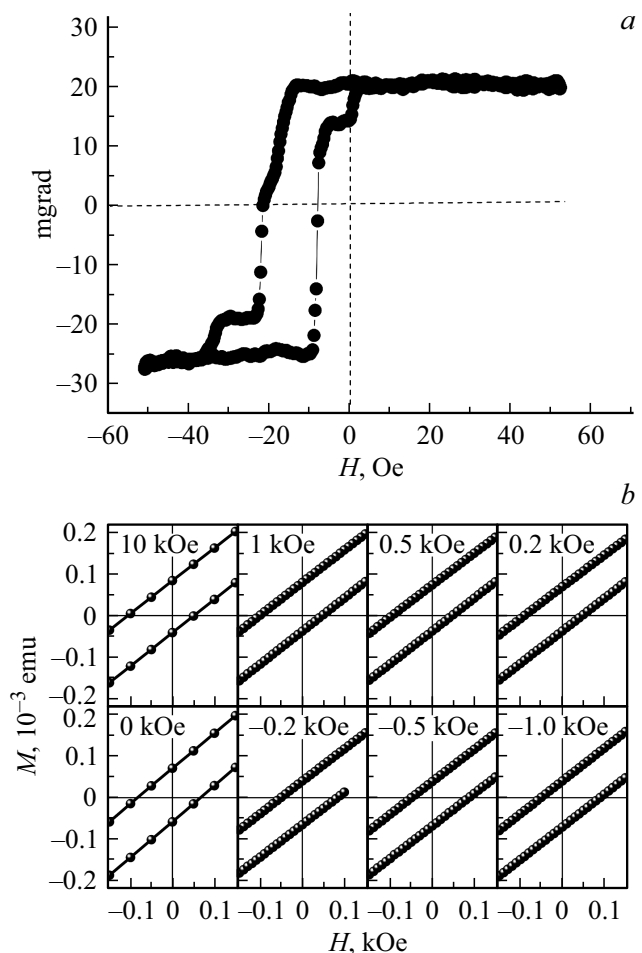
Микропровода диаметром 60–70  $\mu\text{m}$  и длиной 5–10 mm после очистки поверхности размещались в магнетронном напылителе с железной мишенью (99.99%), где в вакууме 0.1 Pa производили напыление слоя железа толщиной 20–30  $\mu\text{m}$ .

Магнитные свойства микропроводов исследовали на отдельных образцах в SQUID-магнетометре MPMS XL

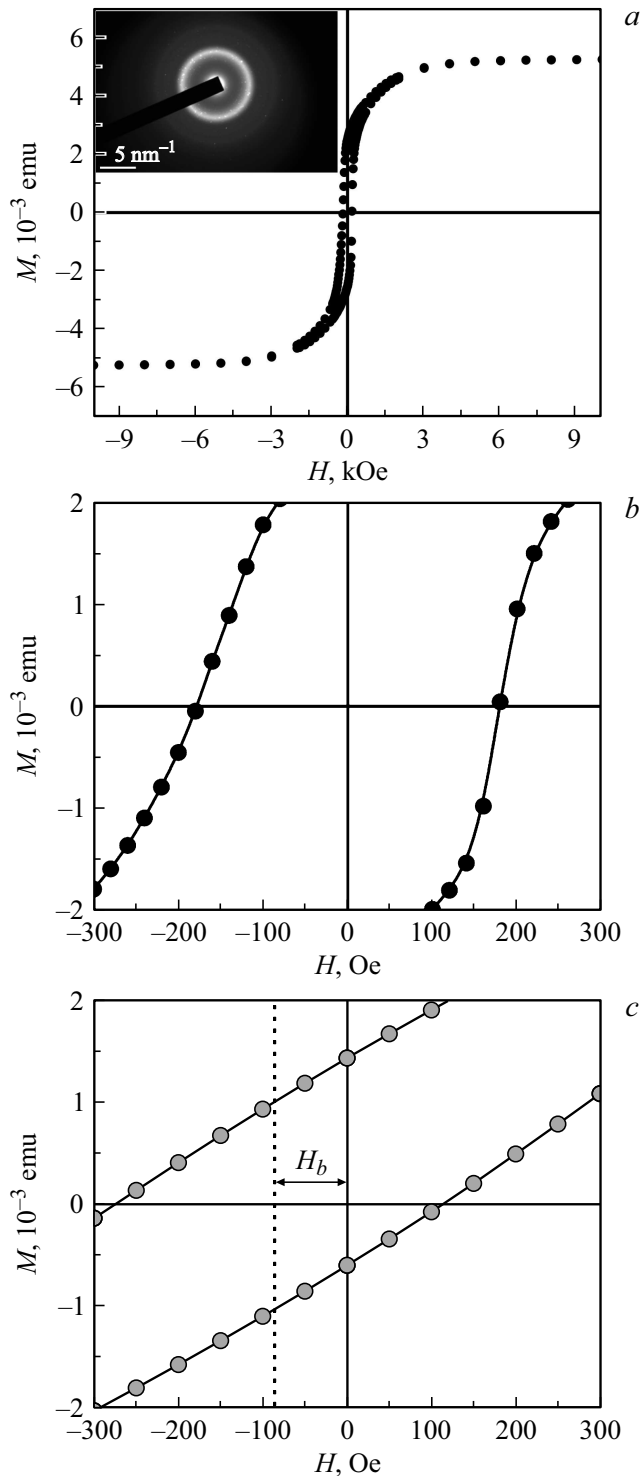
Quantum design при 300 K. Магнито-оптические измерения проведены при 290 K с помощью микроскопа Керра NEOARK Neomagnesia Lite BH-753 в конфигурации продольного магнито-оптического эффекта с магнитным полем до 1 kOe, направленным вдоль микропровода.

## 3. Экспериментальные результаты

В нанокристаллических микропроводах PrDyFeCoB с ядром  $\alpha$ -Fe, самопроизвольно сформировавшемся в процессе затвердевания расплава, с помощью микроскопа Керра иногда наблюдается магнитный гистерезис со значительным смещением при 300 K (рис. 1, a). Однако в большинстве случаев при комнатной температуре он мал. Это связано со стохастичностью образования фазы  $\alpha$ -Fe при быстром охлаждении. При 2 K смещение петли гистерезиса надежно наблюдается с хорошей воспроизводимостью, давая возможность исследовать его в



**Рис. 1.** a — петля гистерезиса намагниченности, записанная микроскопом Керра при 300 K для микропровода с ядром  $\alpha$ -Fe и оболочкой PrDyFeCoB; b — фрагменты петель гистерезиса  $M(H)$ , записанные при  $T = 2$  K после охлаждения микропровода в различных полях от +10 kOe до -10 kOe.



**Рис. 2.** *a* — гистерезис магнитного момента  $M$  аморфно-нанокристаллического микропровода до напыления железа. На врезке вверху гало на электронной дифрактограмме ТЕМ; *b* — фрагмент гистерезиса магнитного момента аморфно-нанокристаллического микропровода до напыления и *c* — после напыления железа. Стрелкой показана величина обменного смещения.

зависимости от условий экспериментов (рис. 1, *b*). При этом при 2 К величина смещения достигает 50 Ое, а его величина и знак зависят от величины и направления поля, при котором охлаждали микропровод. Поле обменного смещения всегда направлено против внешнего поля. Это указывает на обменный характер смещения.

Далее мы исследовали нанокристаллические микропровода, в которых ядром был многофазный сплав  $\text{PrDyFeCoB}$ , а оболочка  $\alpha\text{-Fe}$  была напылена. Аморфность исходного микропровода контролировалась с помощью просвечивающего электронного микроскопа (ТЕМ). На электронной дифрактограмме (см. врезку на рис. 2, *a*) видны непрерывные гало и редкие рефлексы, что свидетельствует о присутствии, как аморфной, так и нанокристаллической фаз в микропроводе.

После извлечения из магнетронного напылителя, микропровода были помещены в газообразный гелий в магнетометре и измерения их магнитного момента были произведены при 2 К в зависимости от внешнего поля  $H$ . Охлаждение микропровода до 2 К производилось в магнитном поле 1 Ое. Полная полевая зависимость намагниченности  $M$  от поля при 2 К приведена на рис. 2, *a*. До напыления железа смещение петли гистерезиса полностью отсутствует (см. фрагмент петли гистерезиса на рис. 2, *b*), а после напыления железа возникает обменное смещение 70 Ое (рис. 2, *c*). Величина обменного смещения оказывается близка к тому, которое обнаружено в предыдущей серии опытов в микропроводах с ядром  $\alpha\text{-Fe}$  (рис. 1, *b*).

В аморфно-нанокристаллических микропроводах до их покрытия железом перемагничивание происходит путем развития доменной структуры. На рис. 3, *a* и *b* приведены изображения поверхности микропроводов в поляризованном свете микроскопа Керра в различных по величине магнитных полях. При полях более 600 Ое, в которых петля гистерезиса схлопывается, домены полностью исчезают.

Отжиг аморфных микропроводов приводил к тому, что на электронной дифрактограмме вместо непрерывного гало появлялись рефлексы (врезка на рис. 4, *a*), которые характеризовали поликристаллическую структуру микропровода с зернами со средним размером  $0.8 \mu\text{m}$ . При этом узкая петля гистерезиса (рис. 2, *a* и рис. 4, кривая 1) значительно уширялась в результате отжига, так что коэрцитивная сила становилась равна 12 кОе при 300 К (рис. 4, кривая 2). Покрытие слоем железа такого микропровода приводило к возникновению петли гистерезиса сложной формы (рис. 4, кривая 3). Поскольку петля гистерезиса железа обладает близкой к нулю коэрцитивной силой (сходна с рис. 4, кривая 1), можно считать, что происходило аддитивное сложение намагниченностей железной оболочки микропровода и поликристаллического ядра. При этом не наблюдались эффектов обменного смещения при 2 и при 300 К, хотя небольшая ожидаемая величина которых  $\sim 50\text{--}70$  Ое (см. рис. 2) вполне могла быть обнаружен при имеющейся точности измерений.

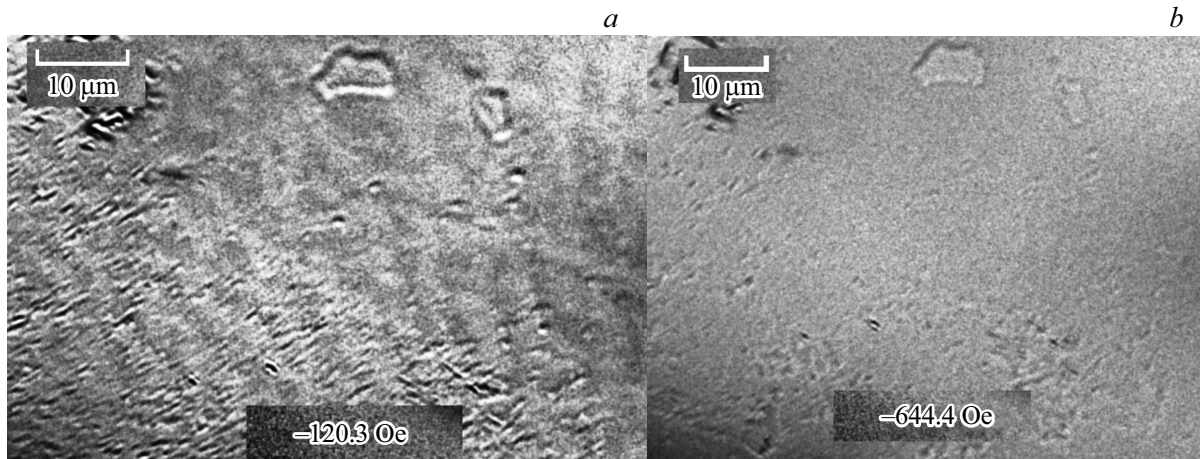


Рис. 3. Изображение одного и того же участка микропровода в микроскопе Керра в продольном магнитных полях  $-120.3$  Oe (a) и  $-644.4$  Oe (b).

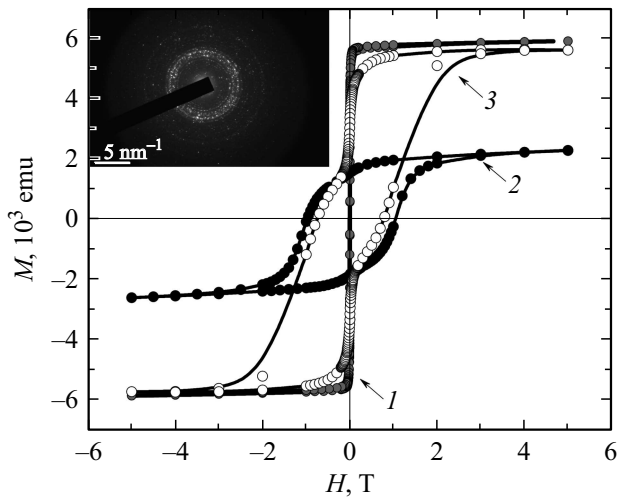


Рис. 4. Петли магнитного гистерезиса микрокристаллических микропроводов PrDy FeCoB: 1 — до отжига, 2 — после отжига 30 min при  $T = 900^\circ\text{C}$ , 3 — после напыления слоя железа. Магнитное поле направлено вдоль образца. На врезке показаны рефлексы электронной дифрактограммы, полученные в HR-TEM.

#### 4. Обсуждение

Магнитное дипольное и обменное взаимодействия между слоями ядра и оболочки обсуждалось ранее [10,11]. В [10] в микропроводах CoFeNiBSiMn/Au/CoNi было обнаружено и точно объяснено влияние магнитного дипольного взаимодействия ядро-оболочка на смещение гистерезиса и переключение намагниченности слоев сердцевин и оболочки. Достаточно толстый промежуточный слой Au подавляет любую обменную связь между ядром CoFeNiBSiMn и оболочкой CoNi, а наблюдаемый сдвиг поля петли магнитного гистерезиса происходит из-за магнитостатической связи. Соответствующее значение поля смещения  $H_b$  определяет-

ся энергией магнитостатического взаимодействия ядро-оболочка,  $E_{int}$ , намагниченностью  $M_{int}$  и объемом  $V$  микропровода

$$H_b = E_{int}/\mu_0 M_{int} V. \quad (1)$$

Для микропровода, длина которого превышает диаметр в  $10^3$  раз, оценка поля сдвига, вызванного магнитостатической связью, дает очень небольшое поле смещения, обычно  $H_b \sim 5-10$  Oe [10]. Однако в наших опытах при высокой коэрцитивной силе  $H_c$  обменное смещение отсутствует даже в микропроводах покрытых железом (рис. 4, a). Это говорит о том, что магнитное дипольное взаимодействие ядра и оболочки микропровода не может объяснить смещения петель гистерезиса, которое, таким образом, имеет обменную природу. Поскольку при взаимной смене материала ядра и оболочки в двухкомпонентной структуре микропровода дипольное магнитное взаимодействие между ядром и оболочкой не изменяется (намагниченность насыщения остается примерно постоянной), возникающие изменения в смещении петель гистерезиса при изменении структуры PrDyFeCoB можно интерпретировать, как чисто обменный эффект.

Для определения источников обменного смещения подытожим результаты всех экспериментов:

1) в микропроводах с оболочкой, содержащей фазы PrDyFeCoB 1-2, 14-1 и 2-14-1, где включения  $\alpha$ -Fe возникают самопроизвольно в процессе затвердевания расплава, имеет место обменное смещение 50 Oe при 2 K;

2) в микропроводах с ядром PrDyFeCoB, содержащем фазы PrDyFeCoB 1-2, 14-1 и 2-14-1, и преднамеренно напыленной оболочкой  $\alpha$ -Fe имеет место обменное смещение 70 Oe;

3) в микропроводах с микрокристаллическим ядром PrDyFeCoB, состоящим в основном из фазы 2-14-1, покрытых  $\alpha$ -Fe обменное смещение отсутствует;

4) в аморфно-нанокристаллических микропроводах не содержащих оболочки или включений железа, обменное смещение отсутствует.

Из этих данных следует, что присутствие  $\alpha$ -Fe является обязательным условием возникновения обменного смещения, и одной из границ интерфейса, приводящего к этому эффекту, является  $\alpha$ -Fe. Фаза 2-14-1 не участвует в формировании обменного смещения. Обсуждая возможность участия фаз 1-2 и 1-4-1 отметим, что в них тяжелые редкоземельные ионы Dy связаны с подрешеткой переходных металлов антиферромагнитным образом и ферромагнитные фазы  $Dy(FeCo)_2$  и  $Dy(FeCo)_4B$  могут на интерфейсе с  $\alpha$ -Fe давать обменное смещение. Фазы  $Pr(FeCo)_2$  и  $Pr(FeCo)_4B$  с легким элементом Pr являются ферромагнитными, и поэтому в принципе не могут участвовать в формировании обменного смещения на границе с  $\alpha$ -Fe.

## 5. Выводы

1) В микрокристаллических микропроводах  $PrDyCoFeB$  с широкой петлей гистерезиса напыление железа приводит к появлению составной петли гистерезиса с аддитивными вкладками оболочки железа и ядра микропровода, однако при этом не возникает обменного смещения петли гистерезиса. Поскольку основной объем микропровода состоит из микрокристаллов фазы 2-14-1, можно предполагать, что интерфейс этой фазы с  $\alpha$ -Fe не является источником обменного смещения.

2) В аморфно-нанокристаллических микропроводах  $PrDyCoFeB$  с напыленным слоем железа на их поверхность при 2 К наблюдается обменное смещение 70 Oe, которое отсутствует в тех же микропроводах до напыления. Величина обнаруженного эффекта смещения в микропроводах с напыленным слоем железа близка к обменному смещению 50 Oe в микропроводах, где включения железа самопроизвольно формировались в ядре микропровода в процессе охлаждения расплава. Знак и величина обменного смещения определяются величиной магнитного поля, приложенного при их охлаждении до 2 К. Это показывает, что причиной смещения является обменное взаимодействие на границе между ферромагнитной фазой  $\alpha$ -Fe и ферромагнитными фазами  $Dy(CoFe)_2$  или  $Dy(CoFe)_4B$ , независимо от способа создания интерфейса ферромагнетик-ферромагнетик.

## Финансирование работы

Работа выполнена в рамках программы ИПХФ РАН АААА-А19-119092390079-8, при поддержке гранта Президента РФ для поддержки ведущих научных школ 2644.2020.2 и гранта РФФИ 20-32-70025 „Стабильность“

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] J. Torrejón, M. Vázquez, L.V. Panina. *J. Appl. Phys.* **105**, 033911 (2009).
- [2] R.B. Morgunov, O.V. Koplak. *Mater. Lett.* **273**, 127954 (2020).
- [3] R.B. Morgunov, O.V. Koplak, V.P. Piskorskii, D.V. Korolev, R.A. Valeev, A.D. Talantsev. *J. Magn. Magn. Mater.* **497**, 166004 (2020).
- [4] S. Wang, Y. Liang, F. Ye, G. Geng, J. Lin. *J. Mater. Proc. Tech.* **249**, 325 (2017).
- [5] H.L. Seet, X.P. Li, K.S. Lee, L.Q. Liu. *J. Mater. Proc. Tech.* **192–193**, 350 (2007).
- [6] K. Pirota, M. Hernandez-Velez, D. Navas, A. Zhukov, M. Vazquez. *Adv. Funct. Mater.* **14**, 266 (2004).
- [7] J. Escrig, S. Allende, D. Altbir, M. Bahiana, J. Torrejon, G. Badini, M. Vazquez. *J. Appl. Phys.* **105**, 023907 (2009).
- [8] R. Szary, I. Luciu, D. Duday, E.A. Perigo, T. Wirtz, P. Choquet, A. Michels. *J. Appl. Phys.* **117**, 17D134 (2015).
- [9] O.V. Koplak, V.L. Sidorov, E.I. Kunitsyna, R. A. Valeev, D.V. Korolev, V.P. Piskorskii, R.B. Morgunov. *Phys. Solid State* **61**, 2061 (2019).
- [10] O.V. Koplak, R.B. Morgunov. *Mater. Sci. Eng. B* **263**, 114845 (2021).
- [11] J. Escrig, S. Allende, D. Altbir, M. Bahiana, J. Torrejon, G. Badini, M. Vazquez. *J. Appl. Phys.* **105**, 023907 (2009).
- [12] Е.Н. Каблов, О.Г. Оспенникова, И.И. Резникова, Р.А. Валеев, И.В. Чередниченко, Р.Б. Моргунов. *Авиационные материалы и технологии* **S2**, 42 (2015).
- [13] Е.Н. Каблов, А.Ф. Петраков, В.П. Пискорский, Р.А. Валеев, Е.Б. Чабина. *Металловедение и термическая обработка металлов* **6**, 12 (2005).

Редактор Т.Н. Василевская