

УДК 537.311; 537.611.44

©1994

## ИЗМЕРЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА СПИНОВОЙ ЖЕСТКОСТИ В СИСТЕМЕ $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$ МЕТОДОМ ФЕРРОМАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА

Ю.В.Горюнов, И.А.Гарифуллин

Исследован ферромагнитный резонанс в тонких пленках палладия, легированного небольшой ( $\sim 0.5$  ат.%) примесью железа. Обнаружены зависящие от толщины пленки сдвиг и уширение резонансной линии. В предположении, что эффект обусловлен проявлением спин-волнового резонанса, проведена оценка коэффициента спиновой жесткости. Его значение  $D = 1700 \pm 300 \text{ K} \cdot \text{Å}^2$  оказалось значительно больше величины, оцененной ранее из измерений другими методами.

Палладий — «почти ферромагнитный» металл, близкий к точке стонеровской неустойчивости. Он образует целый ряд сплавов, проявляющих необычные магнитные и электрические свойства. Наиболее впечатляющим из них является возникновение гигантского магнитного момента при легировании палладия незначительным ( $\sim 10^{-2}$  ат.%) количеством железа, кобальта или марганца. Эффективный магнитный момент, приходящийся на один атом примеси, оказывается аномально большим. Например, в сплаве  $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$  при  $x < 0.003$  он равен  $12 \mu_B$ .

Возникновение гигантского магнитного момента связывают обычно (см., например, обзор [1]) с обменным взаимодействием примесного спина с зонными  $d$ -электронами палладия, в результате чего вблизи примеси образуется обширное облако спиновой поляризации. Перекрывание таких облаков приводит к косвенному обменному взаимодействию примесных спинов. Считается, что ферромагнитная часть потенциала косвенного обмена имеет вид  $V = V_0(r/R) \exp(-r/R)$ , где  $R \sim 5 \text{ Å}$ , и ответственна за многие аномалии, наблюдаемые в этих сплавах [1].

Важной характеристикой, определяющей низкочастотный спектр спиновых возбуждений и содержащей информацию о характере обменных взаимодействий между магнитными ионами, является коэффициент жесткости спиновых волн (константа неоднородного обменного взаимодействия) [2]. В связи с этим предпринимались многочисленные попытки оценок этой величины из измерений электросопротивления [2,4], намагниченности [5], теплоемкости [6] и ядерно-магнитного резонанса [7]. Однако такие оценки могут быть сделаны лишь на основе целого ряда предположений относительно различных параметров теории. Как

следствие, выводы о характере температурных или полевых зависимостей, а также о самих значениях коэффициента спиновой жесткости нередко противоречивы. Прямые же нейтронографические измерения [8] коэффициента спиновой жесткости выполнены только для сплавов с высоким  $x > 0.01$  содержанием магнитных примесей, когда они ведут себя как обычные ферромагнетики. Многие характеристики спиновой системы, в том числе и коэффициент спиновой жесткости, могли бы быть непосредственно получены в экспериментах по спин-волновому резонансу.

В данной работе представлены первые результаты изучения ферромагнитного резонанса (ФМР) в тонкопленочных образцах  $Pd_{1-x}Fe_x$ , из которых удалось оценить коэффициент жесткости спиновых волн. Для исследования был выбран сплав  $Pd_{1-x}Fe_x$  с  $x = 0.005$ . В соответствии с известными данными [1] при такой концентрации магнитной примеси наблюдаются гигантский магнитный момент на атом железа и характерный ход температурной зависимости при температурах ниже температуры магнитного упорядочения. В связи с этим можно было ожидать, что экспериментальные данные будут содержать информацию об обменных взаимодействиях, ответственных за аномальные свойства сплавов палладия. Наши исследования можно условно разделить на два этапа. На первом этапе было показано, что массивный материал имеет характеристики, аналогичные описанным в литературе. На втором этапе были исследованы пленочные образцы того же состава, что и массивный материал. Анализ полученных данных по ФМР позволил провести оценку коэффициента спиновой жесткости.

## 1. Экспериментальные результаты и их анализ

1) **Образцы.** Сплав необходимого состава был приготовлен сплавлением исходных компонентов в дуговой печи в атмосфере очищенного аргона на медном водоохлаждаемом поду. Чистота исходных компонентов была 99.99 вес.%. Пленочные образцы получались в вакууме  $1 \cdot 10^{-6}$  Тор термическим испарением этого сплава. При температуре испарения табличные значения давлений насыщенных паров для железа и палладия практически совпадали. Это позволяло надеяться на то, что в процессе испарения изменений состава происходить не будет. Скорость напыления составляла  $\sim 100 \text{ \AA}/\text{с}$ . В качестве подложек были использованы пластины полированного плавленого кварца размером  $15 \times 4 \times 1 \text{ мм}$ . Толщина пленок  $L$  от 700 до  $2 \cdot 10^4 \text{ \AA}$ . Измерение  $L$  производилось кварцевым измерителем толщины КИТ-1.

Для исследований характеристик массивного материала (с характерными размерами, много большими скин-слоя на частоте измерений ФМР) были использованы два вида образцов: образец в форме шарика диаметром  $d \sim 3 \text{ мм}$ , приготовленный в дуговой печи аналогично материалу для напыления пленок, и пленочный образец толщиной  $L = 2 \text{ мкм}$ .

2) **Массивные образцы: намагниченность и ФМР.** Измерения намагниченности были проведены методом весов Фарадея. При измерениях пленочных образцов магнитное поле лежало в плоскости образца. В парамагнитном состоянии магнитная восприимчивость подчинялась закону Кюри-Вейсса  $\chi = C/(T - \theta)$  с пара-

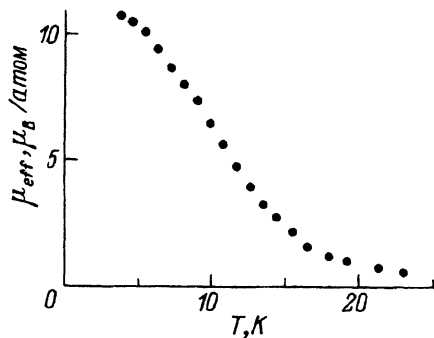


Рис. 1. Намагниченность насыщения сплава  $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$  ( $x = 0.005$ ) в зависимости от температуры в поле 0.07 Т.

магнитной температурой Кюри  $\vartheta = 18$  К. Температурная зависимость магнитного момента насыщения при низких температурах показана на рис. 1. Эта зависимость аналогична полученной ранее для образцов с близким составом [1]. Значения  $\vartheta$  и эффективного магнитного момента, приходящегося на 1 атом железа  $\mu_{\text{eff}} = 10.5\mu_B$ , также оказались близкими к известным для этой концентрации величинам [9]. Важно при этом отметить, что данные, полученные на пленочных образцах с толщинами 1–2 мкм, совпадали в пределах экспериментальных ошибок с данными для образца в форме шарика. Это позволяет считать, что при выбранной процедуре напыления пленок заметных изменений состава не произошло.

Измерения ФМР были выполнены на частоте 9.4 ГГц на модуляционном спектрометре ВЕ-R418<sup>8</sup> фирмы «Bruker» в диапазоне температур 1.6–30 К. При измерениях пленочных образцов в параллельной и перпендикулярной ориентациях плоскости образцов относительно постоянного внешнего магнитного поля магнитная компонента СВЧ поля  $H_1$  всегда находилась в плоскости пленки.

Для образцов в форме шарика и толстой пленки ( $L \gg \delta$ , где  $\delta$  — глубина скин-слоя) производная сигнала поглощения имела асимметричную форму. Это связано с тем, что поглощаемая при ФМР мощность определяется эффективной магнитной проницаемостью  $\mu_{\text{eff}} = (\mu_1^2 + \mu_2^2)^{1/2} + \mu_2$ , где  $\mu_1$  и  $\mu_2$  — действительная и мнимая части комплексной магнитной проницаемости соответственно [10]. Поскольку для исследованных нами образцов магнитная восприимчивость мала по сравнению с единицей, то поглощаемая мощность, как и в парамагнитном металле, оказывается пропорциональной сумме кривых дисперсии и поглощения. В связи с этим для определения параметров резонансной линии можно воспользоваться стандартной для ЭПР в металлах процедурой [11]. Для образца в форме шарика полученное таким образом значение резонансного поля  $H_0$  соответствовало известному для этой системы  $g$ -фактору, равному 2.22 [9].

Резонансные значения полей  $H_{\perp}$  и  $H_{\parallel}$  для пленки толщиной  $L = 2$  мкм при перпендикулярной и параллельной ориентациях магнитного поля относительно плоскости образцов с высокой точностью удовлетворяли известным соотношениям

$$H_0 = H_{\perp} - 4\pi M,$$

$$H_0 = [H_{\parallel}(H_{\parallel} + 4\pi M)]^{1/2}, \quad (1)$$

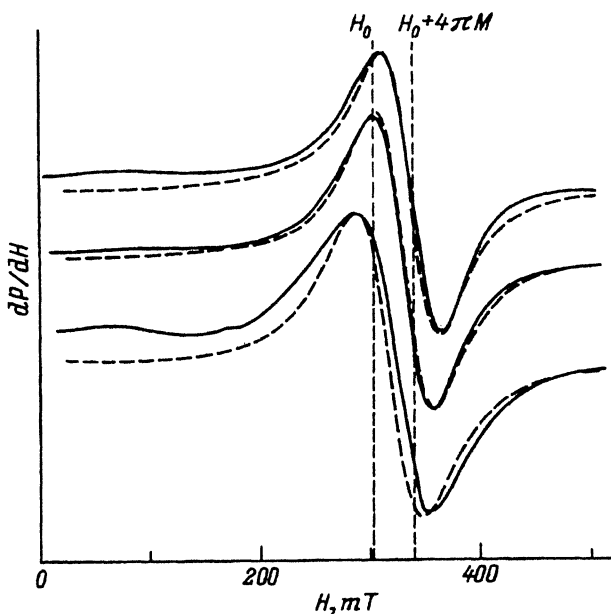


Рис. 2. Записи производной по полю резонансных сигналов в относительных единицах от пленок (сверху вниз) толщиной 1500, 1200, 840 Å (сплошные линии) при  $T = 4.2$  К в перпендикулярной ориентации плоскости пленки относительно направления внешнего магнитного поля.

Штриховые линии — расчетные спектры при следующих значениях входящих в (9) параметров  $\epsilon = 10$ ,  $D' = 1680$  К·Å<sup>2</sup>,  $D'' = 870$  К·Å<sup>2</sup>,  $H_0 = 302.0$  мТ,  $4\pi M = 37.6$  мТ. Вертикальные линии — положение резонансных линий соответственно для шара и толстой пластины.

где  $H_0 = \hbar\omega/g\mu_B$ ,  $\omega$  — рабочая частота спектрометра,  $M$  — намагниченность насыщения образца.

3) Ф М Р в тонких пленках. Результаты измерений ФМР в образцах с толщиной  $L < 0.2$  мкм показаны на рис. 2. Как видно из этого рисунка, форма резонансных кривых оказывается почти симметричной. Это связано с тем, что для этих образцов глубина скин-слоя  $\delta$  оказывается много большей  $L$  (из наших измерений электросопротивления скин-слой на рабочей частоте спектрометра оказался порядка 2.5 мкм). Наиболее интересным результатом для этих образцов, на

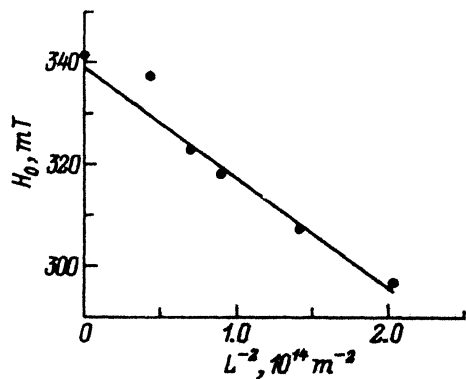


Рис. 3. Резонансные поля пленок в зависимости от обратного квадрата толщины пленок  $(1/L)^2$  при  $T = 4.2$  К.

наш взгляд, является зависимость параметров ФМР от толщины пленки. Из рис. 2 видно, что в поперечном поле и при фиксированной температуре с уменьшением толщины пленки на фоне растущей ширины резонансной линии происходило ее смещение в сторону низких полей. Величина этого смещения квадратичным образом зависела от обратной толщины пленки (рис. 3). Хотя величины изменения положения резонансной линии невелики, они все же значительно больше ошибки эксперимента. В продольном поле данный эффект оказывается менее выраженным.

## 2. Обсуждение результатов

Можно предположить, что обнаруженный эффект смещения и уширения линии ФМР в тонких пленках связан с возбуждением спиновых волн. Если расстояние между соседними спин-волновыми сателлитами резонансной линии меньше ширины линии  $\Delta H$ , то спектр спин-волновых резонансов будет выглядеть как одиночная линия с изменяющимися в зависимости от толщины пленки резонансным значением поля и шириной.

Для выяснения поведения формы кривой ФМР в этом случае рассмотрим стоячие спиновые волны в пленке из изотропного ферромагнетика. Пусть она намагничена до насыщения внешним полем  $H$ , направленным по нормали (совпадающей с осью  $z$ ) к поверхности пленки. Мы не будем учитывать проводимость пленки, поскольку в нашем случае  $L \ll \delta$  и амплитуда переменного магнитного поля  $H_1$  однородна по толщине. Линеаризованное уравнение для движения поперечной компоненты  $m_+(z)$  переменной намагнитченности можно записать в виде (см., например, выражение (8.3.23) в [2])

$$\left( \omega_0 - \omega + D \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) m_+(z) = -\gamma M H_1. \quad (2)$$

Здесь

$$\omega_0 = \gamma(H_0 + i\Delta H), \quad \omega = \gamma(H - 4\pi M),$$

$\gamma = g\mu_B/\hbar$  — гиромагнитное отношение,  $D$  — коэффициент спиновой жесткости.

Величина  $D$  определяется обменным взаимодействием между локализованными моментами. Если предположить, что помимо собственной релаксации, учтенной в  $\Delta H$ , имеется затухание спиновых волн, растущее с волновым вектором как  $q^2$ , то это эквивалентно тому, что коэффициент  $D$  имеет некоторую мнимую добавку и его можно записать в виде комплексной величины  $D = D' - iD''$ .<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Известно (см., например, [1]), что затухание спиновых волн в неупорядоченных ферромагнетиках пропорционально  $q^5$  ( $q$  — волновой вектор). Здесь же, нельно записывая затухание как  $D''q^2$ , мы имеем в виду эффект неоднородного уширения, возникающего вследствие неодинаковости толщины пленки по образцу  $\delta L$ , которая приводит к неопределенности волнового вектора  $\delta q \sim \delta L/L$  и соответственно к уширению сателлитной линии, соответствующей спиновой волне с волновым вектором  $q$ , на величину  $(D'q^2)(\delta L/L)$ .

Уравнение (2) следует дополнить граничными условиями

$$\left. \frac{\partial m_+(z)}{\partial z} \right|_{z=0} = \varepsilon \frac{m_+(0)}{L},$$

$$\left. \frac{\partial m_+(z)}{\partial z} \right|_{z=L} = -\varepsilon \frac{m_+(L)}{L}, \quad (3)$$

где  $\varepsilon$  — феноменологический параметр, учитывающий потерю неравновесной намагниченности на границах. Чтобы обезразмерить этот параметр, правые части выражений (3) поделены на  $L$ .

Известны [2] предельные случаи решения уравнения (2) с граничными условиями (3): а)  $\varepsilon = 0$  соответствует свободным границам. Поскольку переменное магнитное поле  $H_1$  однородно в образце, то наблюдается обычный ФМР, обусловленный однородной прецессией намагниченности; б)  $\varepsilon \rightarrow \infty$  соответствует полному закреплению спинов на поверхности ( $m_+(0) = m_+(L) = 0$ ). В этом случае в спектре появляются линии поглощения магнонами с волновым вектором  $q_n = (\pi n/L)$  с  $n = 1, 3, 5 \dots$ , расположенные в полях

$$H_n = (\hbar\omega_0/g\mu_B) + 4\pi M - D'q_n^2. \quad (4)$$

При этом линия нулевой гармоники в спектре отсутствует. Амплитуда возбуждаемых стоячих волн уменьшается с увеличением  $n$  как  $n^{-2}$ . Если предположить, что наблюдаемые нами резонансные линии обусловлены в основном первой гармоникой ( $n = 1$ ), то из наклона прямой на рис. 3 в соответствии с (4) можно получить значение действительной части коэффициента спиновой жесткости  $D' \simeq 1600 \text{ K} \cdot \text{Å}^2$ .

Для того чтобы учесть влияние более высоких гармоник при произвольных значениях величины  $\varepsilon$ , необходимо вычислить форму линии поглощения. Поглощаемая при ФМР мощность

$$P \sim \text{Im} \left\{ \frac{H_1}{L} \int_0^L m_+(z) dz \right\}, \quad (5)$$

где  $m_+(z)$  — решение уравнения (2) с граничными условиями (3).

Общее решение уравнения (2) имеет вид

$$m_+(z) = A \text{ch} kz + B \text{sh} kz + C, \quad (6)$$

где  $k = \sqrt{-(\omega_0 - \omega)D}$  есть корень однородного уравнения  $(\omega_0 - \omega) + Dk^2 = 0$ . Подставив (6) в (2), найдем, что

$$C = -\frac{\gamma M H_1}{(\omega_0 - \omega)}. \quad (7)$$

Параметры  $A$  и  $B$  в (6) подбираются таким образом, чтобы удовлетворить граничным условиям (3). Они оказались равными

$$A = -C \frac{\varepsilon}{kL} \frac{1 + \text{ch}(kL) + (\varepsilon/kL) \text{sh}(kL)}{\text{sh}(kL) + 2(\varepsilon/kL) \text{ch}(kL) + (\varepsilon/kL)^2 \text{sh}(kL)},$$

$$B = -C \frac{\varepsilon}{kL} \frac{(\varepsilon/kL) - \operatorname{sh}(kL) - (\varepsilon/kL) \operatorname{ch}(kL)}{\operatorname{sh}(kL) + 2(\varepsilon/kL) \operatorname{ch}(kL) + (\varepsilon/kL)^2 \operatorname{sh}(kL)}. \quad (8)$$

Подставляя (6)–(8) в (5), получим

$$P = (\gamma M H_1^2) \operatorname{Im} \left\{ -\frac{1}{\omega_0 - \omega} \left[ 1 - \frac{2\varepsilon}{kL} \frac{1}{kL + \varepsilon \operatorname{cth}(kL/2)} \right] \right\}. \quad (9)$$

Легко видеть, что это выражение в предельных случаях  $\varepsilon = 0$  и  $\varepsilon \rightarrow \infty$  приводит к результатам, описанным выше. Численный расчет спектров ФМР при произвольных значениях параметра  $\varepsilon$  по формуле (9) показал, что в широком интервале значений параметра  $\varepsilon \geq 10$  положение и интенсивности отдельных спутников практически не зависят от  $\varepsilon$ . Величина действительной части коэффициента спиновой жесткости  $D'$ , полученная в результате моделирования отдельных экспериментальных спектров с  $\varepsilon = 10$ , составляет  $1680 \pm 300 \text{ К} \cdot \text{Å}^2$ , что близко к значению, которое было получено непосредственно из наклона прямой на рис. 3 в предположении, что резонансное поглощение обусловливается в основном первой гармоникой ( $n = 1$ ) спиновой волны при полном закреплении поверхностных спинов. При уменьшении  $\varepsilon$  согласия рассчитанных из (3) спектров с экспериментальными удастся добиться при больших значениях  $D'$ . В связи с этим приведенную величину коэффициента спиновой жесткости можно рассматривать лишь как нижнюю границу возможных значений  $D'$  для сплава  $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$  с  $x = 0.005$  в поле 0.3 Т при температуре 4.2 К.

Как указывалось выше, в параллельной ориентации пленки относительно постоянного магнитного поля эффект смещения линии ФМР менее выражен. Вероятно, это обусловлено природой поверхностной анизотропии, которая приводит к уменьшению  $\varepsilon$  в параллельной ориентации пленки.

Таким образом, из данных ФМР проведена оценка коэффициента спиновой жесткости в системе  $\text{Pd}_{1-x}\text{Fe}_x$  при малом содержании примеси железа. Оцененная величина коэффициента спиновой жесткости оказывается приблизительно в четыре раза больше значений, полученных ранее другими методами. Так, из температурной зависимости при  $x \simeq 0.005$  было получено  $D' = 366 \text{ К} \cdot \text{Å}^2$  [8]. Такое расхождение может быть обусловлено приближенным характером теории, описывающей температурное поведение намагниченности. Полученный в данной работе результат может оказаться важным для верификации различных теорий, поскольку вычисление коэффициента спиновой жесткости — известная проблема, которая в настоящее время до конца не решена (см., например, [1]).

Авторы благодарны Г.Г.Халиуллину за полезное обсуждение результатов работы.

#### Список литературы

- [1] Коренблит И.Я., Шендер Е.Ф. // УФН. 1978. Т. 126. № 2. С. 233–268.
- [2] Гуревич А.Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. М.: ФМЛ, 1973.
- [3] Williams G., Loram J.W. // J. Phys. Chem. Solids. 1969. V. 30. N 7. P. 1827–1833.
- [4] Skalski S., Kawatra M.P., Mydosh J.A., Budnick J.I. // Phys. Rev. B. Solid State. 1970. V. 2. N 9. P. 3613–3619.

- [5] Oder R.R. // J. Appl. Phys. 1969. V. 40. N 3. P. 1204-1205.  
[6] Veal B.W., Rayne J.A. // Phys. Rev. A. 1964. V. 135. N 2A. P. 442-446.  
[7] Skalski S., Budnick J.T., Lechatou J. // J. Appl. Phys. 1968. V. 39. N 2. P. 965-966.  
[8] Stringfellow M.W. // J. Phys. Ser. C. 1968. V. 1. P. 1699-1705.  
[9] Nieuwenhuys G. // Adv. Phys. 1975. V. 24. P. 515.  
[10] Туров Е.А. // Сб. «Ферромагнитный резонанс» / Под ред. С.В.Вонсовского. М.: ФМЛ, 1961. С. 170-214.  
[11] Альтшулер Т.С., Гарифуллин И.А., Харахашьян Э.Г., Шатруков Л.Ф. // ФТТ. 1972. Т. 14. № 8. С. 2555.

Казанский физико-технический институт  
им. Е.К.Завойского КНЦ РАН

Поступило в Редакцию  
18 марта 1993 г.  
В окончательной редакции  
21 сентября 1993 г.

