05

# Влияние ионного ( $Ar^+$ ) облучения на кластерный магнетизм и магнитные взаимодействия в аморфном сплаве $Fe_{67}Cr_{18}B_{15}$

© В.Д. Окунев<sup>1</sup>, З.А. Самойленко<sup>1</sup>, Р. Aleshkevych<sup>2</sup>, Н. Szymczak<sup>2</sup>, А. Szewczyk<sup>2</sup>, И.А. Антошина<sup>3</sup>

1Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина,

Донецк, Украина <sup>2</sup> Institute of Physics, Polish Academy of Sciences,

Warsaw, Poland

3 Обнинский технический университет атомной энергетики,

Обнинск, Россия

E-mail: vladimir.okunev2010@mail.ru

Поступила в Редакцию 14 марта 2019 г. В окончательной редакции 4 июня 2019 г. Принята к публикации 4 июня 2019 г.

При сопоставлении спектров резонансного магнитного поглощения с данными по структуре и магнитным свойствам аморфных образцов  $Fe_{67}Cr_{18}B_{15}$  показано, что случайно неоднородная среда аморфного сплава является многофазной. Наличие двух типов образцов одного и того же химического состава, но с различной кластеризованной структурой и использование в эксперименте ионного  $(Ar^+)$  облучения способствовали выделению четырех основных фаз с различными магнитными свойствами. Основная фаза  $\alpha$ -(Fe, Cr) содержит крупные кластеры размером D < 400 Åсо склонностью к фазовому расслоению железа  $(\alpha$ -Fe) и хрома  $(\alpha$ -Cr), что при облучении усиливает конкурирующие FM и AFM магнитные взаимодействия и увеличивает интенсивность линий резонансного магнитного поглощения, связанных с  $\alpha$ -Fe и  $\alpha$ -Cr. Фаза Fe<sub>3</sub>B (D < 100 Å) в спектрах резонансного поглощения выявляется самостоятельной линией лишь при обособлении ее группировок от кластеров металлической фазы  $\alpha$ -(Fe,Cr). Четвертая фаза, представленная докластерными группировками, исчезает при облучении образцов.

**Ключевые слова:** аморфный металлический сплав; кластерный магнетизм; ионное облучение; спектры магнитного резонансного поглощения; фазовые переходы.

DOI: 10.21883/FTT.2019.10.48248.422

## 1. Введение

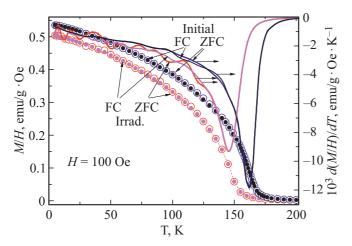
В отличие от систем с дальним атомным порядком, аморфные и стеклообразные вещества оказываются сильно неоднородными, для которых наличие сил химической связи и отличной от абсолютного нуля температуры приводит к кластеризации с реализацией в малых объемах различных структурных модификаций [1–5]. Размер кластеров в этом случае определяет линейный размер крупномасштабных флуктуаций потенциала. Локальная самоорганизация неупорядоченной среды [6] делает невозможным поддержание абсолютного беспорядка в атомной подсистеме.

Исследование структуры подобных систем, в основном, сводится к изучению атомного порядка кластеров. При бедной картине дифракции рентгеновских лучей наличие нескольких типов кластеров делает проблему установления локальной структуры формирующихся атомных группировок всегда сложной. Возможности электрических измерений ограничены, поскольку электрические свойства неупорядоченных систем, как правило, не связаны прямо с их структурой. Возможности получения знаний о структуре и свойствах исследуемых объектов из магнитных измерений значительно шире, однако для многофазных образцов данные о магнитных

свойствах дают лишь усредненную картину. Это иллюстрируется кривыми на рис. 1, на котором приведены температурные зависимости магнитной восприимчивости M(T)/H исследуемого нами аморфного сплава. Его наиболее интересные свойства связаны с наличием хрома [7].

Склонность к расслоению металлической  $\alpha$ -(Fe,Cr) фазы с оттеснением хрома в периферийные области кластеров увеличивает структурную и магнитную неоднородность образцов, создавая конкурирующие ферромагнитные (FM) и антиферромагнитные (AFM) взаимодействия, которые можно усилить ионным облучением, не изменяя химический состав материала [7]. Облучение позволяет существенно изменить намагниченность и температуру Кюри (рис. 1). По поведению производных  $\partial (M/H)/\partial T$  видно также, что облучение размывает переход образца в FM состояние. Кроме этого, изменение температурных зависимостей  $\partial(M/H)/\partial T$ , особенно в режиме ZFC (рис. 1), согласуется с усилением неоднородности образцов, в том числе и за счет генерации системы малых кластеров FM и AFM типа в процессе облучения [7].

Для исследования различных структурных и магнитных модификаций в случайно неоднородной среде изучаемого нами аморфного сплава  $Fe_{67}Cr_{18}B_{15}$ , в дополнение



**Рис. 1.** Температурные зависимости магнитной восприимчивости M(T)/H и производной  $\partial [M(T)/T)]/\partial T$  для исходного состояния аморфной ленты (initial) и после облучения (irrad) в режимах FC (измерения M(T) после охлаждения образца в магнитном поле) и ZFC (измерения M(T) после охлаждения образца в нулевом поле).

к магнитным измерениям, весьма полезны исследования спектров магнитного резонансного поглощения [8]. Мы провели исследования структуры и свойств двух аморфных лент одного и того же состава, но различающихся своими спектрами магнитного резонансного поглощения. Благодаря изучению изменений в спектрах и структуре образцов под влиянием ионного облучения, в данной работе мы показали, что многофазность аморфного сплава обусловлена его кластеризацией, приводящей к формированию четырех основных типов локального атомного порядка с различными магнитными свойствами.

# 2. Образцы и методика эксперимента

Мы провели исследования структуры и свойств лент аморфного сплава  $Fe_{67}Cr_{18}B_{15}$  шириной  $10\,\mathrm{mm}$  и толщиной 30 μm, полученных скоростной закалкой расплава на быстро вращающейся охлаждающей поверхности. Наличие хрома и бора в расплаве уменьшает его склонность к кристаллизации и способствует формированию малых атомных группировок различного типа, взаимно мешающих упорядочению атомов и подрастающих в процессе охлаждения расплава. Размеры флуктуационных группировок атомов и, соответственно, формирующихся при охлаждении расплава кластеров, уменьшаются с увеличением температуры расплава, изменяя тем самым свойства случайно неоднородной среды. При одинаковом химическом составе, параметры образцов определяются температурой расплава и скоростью его охлаждения, что использовалось в работе при изготовлении лент с различной кластеризованной структурой. Для дальнейшего воздействия на эту структуру ленты облучались в ускорителе ионами аргона с энергией  $30\,\mathrm{keV}$  при температурах  $T \leq 100^\circ\mathrm{C}$  потоком  $\Phi = 1.5 \cdot 10^{18}\,\mathrm{ions/cm^2}$ . Магнитные свойства образцов исследовались с помощью SQUID-магнитометра в полях  $H \leq 50\,\mathrm{kOe}$  в температурном интервале  $T = 2-300\,\mathrm{K}$ . Спектры магнитного резонансного поглощения снимались при комнатной температуре, вдали от перехода в магнитоупорядоченное состояние, реализующееся при  $T < 170\,\mathrm{K}$  [7], используя Bruker EMX спектрометр при фиксированной частоте  $f = 9.25\,\mathrm{GHz}$ .

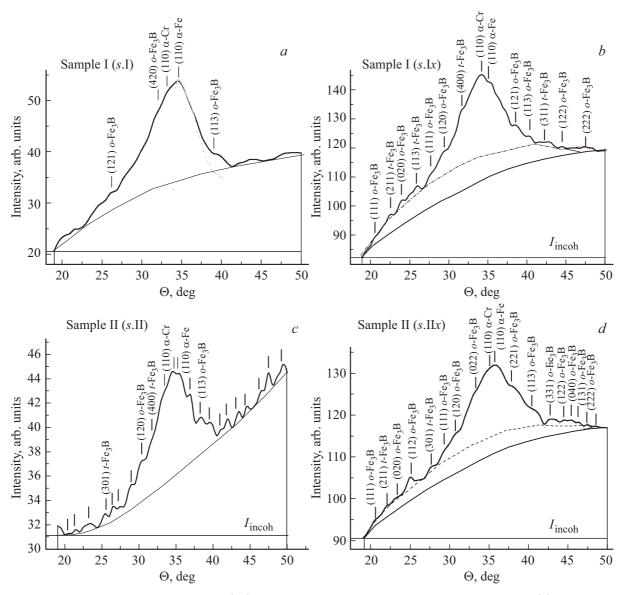
## 3. Экспериментальные результаты

Для выявления связи между атомным порядком и спектрами резонансного магнитного поглощения аморфного сплава  $Fe_{67}Cr_{18}B_{15}$  мы исследовали две аморфные ленты одинакового химического состава, но с различной исходной кластерной структурой (обозначенные как sample I (s.I) или sample II (s.II)) и затем подвергнутые ионному,  $Ar^+$ , облучению, (s.Ix) и (s.IIx).

### 3.1. Особенности атомной структуры

Еще в расплаве наиболее подвижные атомы с ненасыщенной металлической связью, Fe и Cr, первыми образуют малые группировки, подрастающие в процессе закалки и превращающиеся в кластеры, содержащие фрагменты кристаллоподобных плоскостей с плотной упаковкой атомов типа (110) кубической (ОЦК) фазы  $\alpha$ -(Fe,Cr) с промежуточным атомным порядком. Боридная фаза Fe<sub>3</sub>B устойчива до температур кристаллизации ( $\sim 730\,\mathrm{K}$ ) образцов, играя важную роль в стабилизации аморфного состояния. Структура кластеров Fe<sub>3</sub>B сложнее металлических и растут они медленнее, чем кластеры  $\alpha$ -(Fe, Cr) фазы. Диффузионное расслоение расплава с образованием группировок атомов металлической α-(Fe, Cr) и метастабильной тетрагональной t-Fe<sub>3</sub>B (или орторомбической o-Fe<sub>3</sub>B) фаз при стремлении к равновесному состоянию системы останавливается быстрой закалкой. В результате возникают кластеры различного состава, имеющие вероятностный, флуктуационный характер происхождения и распределенные в неупорядоченной межкластерной среде с ближним атомным порядком. На дифракционных картинах образцов в исходном состоянии (рис. 2, a, c) имеется явно выраженное различие в форме гало, представленными диффузными максимумами, образующимися в результате когерентного рассеяния рентгеновских лучей группами параллельных плоскостей различных кристаллографических фаз, которые формируются в соответствии с химическим составом, температурой расплава и скоростью его охлаж-

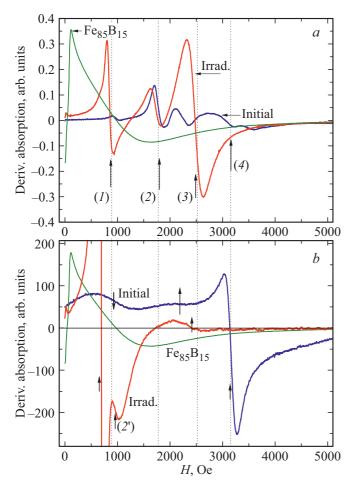
Для образцов (s.II) с развитой кластерной структурой основное гало (рис. 2, c) более узкое по сравнению с гало для образов (s.I), представленным на рис. 2, a, что



**Рис. 2.** Дифракционные картины от образцов (s.I) аморфного сплава  $Fe_{67}Cr_{18}B_{15}$ , после изготовления (a) и облученные (b), а также (s.II), — в исходном состоянии (c) и после облучения (d). Для облученных образцов (s.Ix) и (s.IIx) у оснований гало выделены области второго гало, образованного когерентным рассеянием рентгеновских лучей мелкими кластерами (D < 80 Å [7]), развитыми в результате облучения, из докластерных группировок атомов в разупорядоченной межкластерной среде.

указывает на большие размеры кластеров в образцах (s.II). Для них наблюдаются и хорошо выраженные, хотя и слабые по интенсивности, диффузные максимумы у подножия гало (рис. 2,c), также свидетельствуя о наличии более крупных кластеров метастабильной фазы  $Fe_3B$  по сравнению с образцами (s.I), для которых диффузные максимумы в тех же интервалах углов выявляются слабо (рис. 2,a). Образцы существенно различаются между собой и угловой зависимостью интенсивности некогерентного рассеяния  $(I_{incoh} = f(\theta))$ . Большие размеры кластеров в образцах (s.II) приводят к возникновению в их объеме значительных напряжений, вызывая появление фона с характерной формой и нелинейно возрастающей интенсивностью с углом  $\theta$  (рис. 2,c).

Основными структурными элементами в кластерах металлической фазы являются фрагменты легко застраивающихся плоскостей типа (110), с низкими индексами и наиболее плотной упаковкой атомов. Согласно угловой зависимости полуширины флуктуационных максимумов [1–4,8,9], размеры кластеров для образцов (s.II) с наиболее развитой кластерной структурой меняются в пределах  $D=100-380\,\text{Å}$ , тогда как для образцов (s.I) они значительно меньше,  $D=60-210\,\text{Å}$ . После облучения ионами  $\text{Ar}^+$  при взаимодействии кластеров с диффузионным потоком вакансий [7] интервал изменения размеров кластеров сужается, в основном, из-за уменьшения размера наиболее крупных кластеров. В соответствии с изменением общего вида дифракционных картин



**Рис. 3.** Спектры магнитного резонансного поглощения (при  $T=293~{\rm K}$ ) для исследуемых исходных (initial) и облученных ионами  ${\rm Ar}^+$  потоком  $\Phi=1.5\cdot 10^{18}~{\rm ions/cm^2}$  (irrad) аморфных образцов s.I.(a) и s.II.(b).

(рис. 2, b, d), разница между образцами становится существенно меньше, и вместо указанных выше значений получаем  $D=110-220\,\text{Å}(s.\text{II}x)$  и  $D=90-180\,\text{Å}(s.\text{I}x)$ . Изменения в структуре и кластерном магнетизме образцов под действием ионного облучения проявляются в спектрах магнитного резонансного поглощения.

# 3.2. Спектры магнитного резонансного поглощения

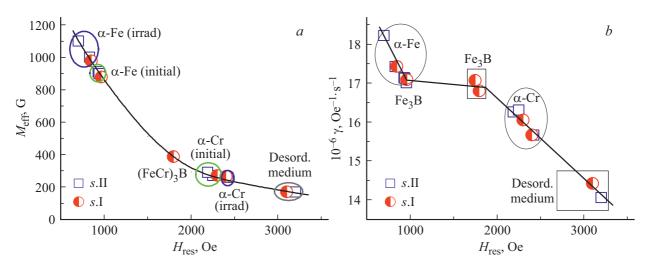
Для исследуемых образцов спиновый резонанс на электронах проводимости [10] не наблюдался. Магнитные резонансы реализуются при участии ансамблей локализованных спинов, способных при низких температурах находиться в магнитоупорядоченном состоянии, связанных с определенными ионами или группировками атомов и сосредоточенных в структурных кластерах. Здесь необходимо напомнить, что спектры снимались при комнатной температуре (в суперпарамагнитном температурном интервале [7,8]), где магнитная восприимчивость образцов на 3—4 порядка меньше, чем

в магнитоупорядоченном FM состоянии при низких температурах. В суперпарамагнитном состоянии локальные магнитные моменты не только в неупорядоченной межкластерной среде, но и в кластерах разупорядочены и взаимодействуют с внешним полем практически не взаимодействуя друг с другом.

Спектры магнитного резонансного поглощения двух образцов с различной кластерной структурой показаны на рис. 3. Спектры содержат четыре линии, характеризующие четыре основные фазы с различными эффективными магнитными моментами, которые или не взаимодействуют или же слабо взаимодействуют между собой. В противном случае, наблюдалась бы только одна усредненная линия поглощения. Например, спектр аморфного сплава, не содержащего хром, Fe<sub>85</sub>B<sub>15</sub>, с температурой Кюри  $T_C \approx 630 \,\mathrm{K}$ , из-за сильного взаимодействия между фазами α-Fe и Fe<sub>3</sub>B, состоит из одной линии ферромагнитного резонанса (FMR) (рис. 3). Для обоих образцов в спектрах слева, при минимальных резонансных полях, расположена линия железа (1), не являющаяся основной для исходного состояния аморфных лент. Для образца (s.I) ее интенсивность мала (рис. 3, a), что обусловлено слабым расслоением ферромагнитного железа и антиферромагнитного хрома в кластерах  $\alpha$ -(Fe,Cr) фазы. После облучения, усиливающего разделение железа и хрома в кластерах [7], интенсивность линии (1), смещающейся в сторону меньших Hres, многократно возрастает (рис. 3, a). Этот результат показывает, что основной вклад в поглощение в самом деле дают ансамбли однотипных локализованных спинов в кластерах структурных группировках с промежуточным атомным порядком.

Для спектров образцов (s.II), с сильным расслоением железа и хрома в кластерах  $\alpha$ -(Fe,Cr) фазы, уже в исходном состоянии, линия (1), при  $H_{\rm res} \sim 900\,{\rm Oe}$ , широкая (рис. 3, b), но ее интенсивность существенно выше по сравнению с исходным состоянием образцов (s.I) (рис. 3,a), что обусловлено более выраженным расслоением атомов Fe и Cr в образце (s.II), проявляющемся в большем контрасте расщепленного максимума α-Fe и α-Cr на дифракционной картине (рис. 2, c) по сравнению с рис. 2, a. Облучение приводит к значительному увеличению интенсивности линии (1) в спектре, к ее раздвоению и, как и для образца (s.I), к смещению в сторону низких  $H_{\text{res}} = 700 \,\text{Oe}$  (рис. 3, b) и больших  $M_{
m eff}=1100\,{
m G}$  по сравнению со значениями  $H_{
m res} = 900\,{
m Oe}$  и  $M_{
m eff} = 900\,{
m G}$  для исходного состояния. Важную роль в увеличении интенсивности линии (1) для обоих сплавов играет генерация в неупорядочной среде большого количества мелких  $\alpha$ -Fe кластеров  $(D = 40 - 80 \,\text{Å} \, [7]).$ 

Линию (2) мы связываем с фазой  $Fe_3B$ , исходя из ее состава и FM свойств, определяющих возможное положение линии, характеризующей эту фазу. Для образцов (s.I) ионное облучение немного смещает линию в сторону меньших  $H_{\rm res}$ , но практически не влияет на



**Рис. 4.** Зависимость эффективной намагниченности  $M_{\rm eff}$  (a) и гиромагнитного отношения  $\gamma$  (b) от резонансного поля  $H_{\rm res}$  для исходных (init) и облученных (irrad) образцов.

ее интенсивность, что согласуется с данными рентгеноструктурного анализа (рис. 2, a, b). Из всех структурных группировок кластеры, связанные с фазой  $Fe_3B$ , наименее подвержены изменению своего атомного порядка при облучении.

В то же время, для образцов (s.II) наблюдается разрушение наиболее крупных кластеров  $Fe_3B$ , что хорошо видно из поведения диффузных максимумов у подножия основного гало (рис. 2, c, d), вызывая соответствующие изменения в спектре. Для исходного состояния фаза  $Fe_3B$  не имеет самостоятельной линии (рис. 3, b), что обусловлено более развитой по сравнению с образцами (s.I) кластерной структурой. При больших концентрациях кластеров  $\alpha$ -Fe и  $Fe_3B$  они взаимодействуют между собой, формируя одну усредненную линию поглощения, как это происходит в спектре аморфного сплава  $Fe_{85}B_{15}$ , состоящем из одной линии FMR (рис. 3, a, b). Облучение приводит к раздвоению этой линии (рис. 3, b).

Линия (3) связана с фазой  $\alpha$ -Cr. Для образцов (s.I) она выявляется уже в исходных лентах (рис. 3, a). При усилении фазового расслоения железа и хрома в кластерах lpha-Fe,Cr в процессе ионного облучения интенсивность этой линии многократно возрастает, что также подтверждает преобладающий вклад в поглощение ансамблей однотипных спинов в кластерах. Для образцов (s.II) на фоне интенсивной линии (1) линия (3) слабая, но после облучения видна уже достаточно отчетливо (рис. 3, b): благодаря росту концентрации хрома в периферийных областях  $\alpha$ -(Fe,Cr) кластеров, линия (3), относящаяся к фазе  $\alpha$ -Cr, увеличивается по интенсивности и сдвигается в сторону высоких полей (рис. 3, b). Как и для линии (1), рост интенсивности линии (3) для обоих образцов обусловлен генерацией в неупорядочной среде большого количества мелких  $\alpha$ -Cr кластеров ( $D < 80 \, \text{Å}$  [7]).

Линия поглощения (4) при  $H_{\rm res}=3200\,{
m Oe}$  и  $M_{\rm eff}=170\,{
m Oe}$  (g-фактор равен 2) характеризует пара-

магнитный сигнал, обычно наблюдающийся в аморфных материалах различного состава и который мы связываем с разупорядоченной межкластерной средой, с группировками атомов до-критического размера, докластерного уровня, сохраняющими лишь ближний атомный порядок. В них велика доля поверхностных атомов по сравнению с атомами в объеме таких группировок. Электроны, слабо связанные с поверхностными атомами, являются почти свободными, и поэтому их дфактор также равен 2, как и для свободного электрона. Для образца (s.I) в исходном состоянии линия (4)достаточно интенсивна, но исчезает после облучения, что обусловлено уменьшением объема неупорядоченной межкластерной среды и превращением докластерных группировок в мелкие кластеры [7]. Для образцов (s.II), полученных при меньшей скорости закалки, концентрация центров кластеризации, формирующихся в межкластерной среде, велика, и поэтому линия (4) является основной, превосходя по интенсивности все остальные. После облучения, как и для образца (s.I), этой линии нет (рис. 3).

Перечисленные линии характеризуют четыре магнитные фазы с различными эффективными магнитными моментами,  $M_{\rm eff}$ , которые определялись из изучения угловой зависимости резонансного поля. На рис. 4, a приведена зависимость  $M_{\rm eff}$  от  $H_{\rm res}$ .

Изменение  $M_{\rm eff}$  и  $H_{\rm res}$  в широких пределах свидетельствует о значительных различиях магнитных фаз в структуре аморфных лент. Однако имеющаяся количественная разница для двух типов образцов не меняет вид зависимости  $M_{\rm eff}$  от  $H_{\rm res}$ . Это говорит о том, что качественно характер магнитных взаимодействий для них сохраняется, и для всех состояний точки образуют одну гладкую кривую  $M_{\rm eff}=f(H_{\rm res})$  (рис. 4,a).

Учитывая форму образцов, мы провели обработку экспериментальных данных в соответствии с тонкопле-

ночной моделью, для которой условие резонанса имеет вид:  $\sqrt{(H+4\pi M_{\rm eff})H}=\omega/\gamma$ , где  $M_{\rm eff}$  — эффективная намагниченность,  $4\pi M_{\rm eff} = 4\pi M_S - 2K/M_S$ ,  $M_S$  — спонтанная намагниченность, К — одноосная магнитная анизотропия и у — гиромагнитное отношение (отношение магнитного момента частиц к механическому моменту) — важный параметр в описании поведения системы, обладающей магнитным моментом, во внешнем поле [11,12]. Значения у определяются по формуле  $\gamma = g \gamma_0$ , где g — множитель Ланде,  $\gamma_0$ - величина  $\gamma$  для орбитального движения электрона в атоме, принимаемая за единицу гиромагнитного отношения и в системе СГС имеющая вид :  $\gamma_0 = -e/m_e c$ , где e — заряд электрона,  $m_e$  — его масса и c — скорость света. В соответствии с классической теорией, величина у связывает частоту прецессии магнитного момента  $(\omega)$  с магнитным полем:  $\omega = -\gamma H$ . Согласно квантовой теории,  $\gamma$  определяет масштаб расщепления уровней энергии в магнитном поле (эффект Зеемана), равный  $\gamma \hbar H = g \gamma_0 \hbar H$ .

Связь между  $\gamma$  и  $H_{\text{res}}$  определяется соотношением

$$\gamma(H_{
m res}) = rac{\omega}{[(H+4\pi M_{
m eff})H]^{1/2}}.$$

Зависимость  $\gamma=f(H_{\rm res})$  показана на рис. 4, *b*. Из него видно, что тонкопленочная модель не описывает всю совокупность экспериментальных данных — для всех четырех линий в спектрах. Однако, эта зависимость можно аппроксимировать тремя отрезками прямых. Один, с максимальными  $\gamma$  и минимальными значениями  $H_{\rm res}$ , характеризует фазу  $\alpha$ -(Fe,Cr) (изменения  $\gamma$  здесь обусловлены изменениями  $M_{\rm eff}$  при перераспределении Fe и Cr в кластерах в процессе облучения образцов), другой — фазу Fe<sub>3</sub>B и наконец третий участок, формирующийся при малых  $M_{\rm eff}$ , проходит через точки, относящиеся к линиям 3 ( $\alpha$ -Cr) и 4, связанной с локализованными спинами в докластерных атомных группировках.

# 4. Обсуждение результатов

Мы показали, что спектры резонансного магнитного поглощения для аморфного сплава  $Fe_{67}Cr_{18}B_{15}$  определяются его кластерной структурой. Это относится и к исходному состоянию образцов и к наблюдающимся изменениям при ионном облучении. Однако интерпретация происхождения отдельных линий в спектрах требует пояснений. Для металлов или металлических сплавов, как правило, наблюдаются одна или две линии [10]. В представленных же нами спектрах выявлены четыре линии, которые мы связываем с магнитной многофазностью исследуемого аморфного сплава.

При рассмотрении альтернативных объяснений возможной природы поглощения СВЧ-излучения аморфными образцами FeCrB и причины расщепления линий в спектрах полезная обычно оценка соотношения энергии Зеемана и энергии диполь-дипольного взаимодействия

магнитных моментов кластеров вряд ли целесообразна, поскольку диполь-дипольные взаимодействия кластеров практически отсутствуют. Спектры снимались при  $T = 293 \, \text{K}$ , при отсутствии дальнего магнитного порядка в образцах [7,8] (рис. 1). В этом случае магнитные моменты центров с неспаренными электронами в кластерах разупорядочены, и их суммарный магнитный момент близок к нулю. Упорядоченные ансамбли спинов образуются только во внешнем поле, с которым различные центры взаимодействуют практически независимо друг от друга. Кроме этого, даже при низких температурах, при которых крупные кластеры переходят в FM состояние, магнитные моменты кластеров также не могут взаимодействовать между собой из-за наличия у них протяженных периферийных областей, формирующих своеобразную "шубу" с разупорядоченной структурой вокруг центральных частей, обогащенных железом. Экранировка магнитных моментов группировок ферромагнитного железа (при условии, что их размер превышает суперпарамагнитный предел, равный 50 Адля чистого железа [13]), усиливается концентрацией антиферромагнитного хрома в периферийных областях кластеров [7,8]. Формирование этой "шубы"в средах с неупорядоченной структурой неизбежно, поскольку происхождение периферийных областей прямо связано с механизмами роста кластеров [7,8,9]. В результате, даже при температурах, существенно ниже температуры Кюри, после перехода образцов в FM состояние, в них нет спонтанной намагниченности, невозможно формирование классической доменной структуры, а образцы демонстрируют наличие практически нулевой петли гистерезиса [7].

В то же время, при температуре измерения спектров (T = 293 K), несмотря на отсутствие магнитного упорядочения в кластерах, ситуация с резонансным поглощением в них существенно иная по сравнению с неупорядоченной межкластерной средой. Наличие достаточно совершенного атомного порядка в кластерах приводит к более эффективному взаимодействию локальных магнитных моментов с внешним полем, способствуя их облегченному подстраиванию к направлению поля. Для исследуемых аморфных лент это проявляется в увеличении магнитной восприимчивости в несколько раз в суперпарамагнитном интервале (при  $T > 180 \, \mathrm{K}$ ) при генерации в неупорядоченной межкластерной среде ионным облучением малых кластеров с размерами  $D \sim 40 \,\text{Å}$ , заведомо меньшими суперпарамагнитного предела [7]. Поэтому для кластеров характерно появление довольно узких линий резонансного поглощения, в соответствии с количеством различных магнитных фаз. Для неупорядоченной же среды линии поглощения оказываются широкими, что затрудняет их наблюдение. Отсюда и следует выявляющаяся в эксперименте связь между структурой кластеров и спектрами поглощения.

Обсуждая природу линий резонансного поглощения, нельзя обойти стороной возможность возбуждения спиновых волн. Известно [14], что в тонких ферромагнит-

ных пленках может наблюдаться спин-волновой резонанс с последовательностью резонансных максимумов в спектрах поглощения, положения которых определяются порядковым номером спиновой волны, равным числу полуволн, укладывающихся на толщине пленки. Также известно, что для кристаллических структур с несколькими магнитными подрешетками возможно существование нескольких спиновых волн с законом дисперсии, зависящим от магнитной структуры твердого тела [15].

Безусловно, обсуждение возможной связи представленных результатов со спиновыми волнами заслуживает внимания. Однако в исследуемых случайно неоднородных образцах существование спин-волновых мод маловероятно. Для этого есть две основные причины. Одна связана с неоднородностью аморфного сплава, а другая — с температурой измерений спектров и состоянием магнитной подсистемы. В нашем случае основную роль играет сильная неоднородность аморфных лент, которая реализуется согласно замыслу, заложенному в технологию получения аморфного сплава для обеспечения устойчивости образцов к внешним воздействиям при их использовании в атомной энергетике. В соответствии с химическим составом и рентгеноструктурными исследованиями, как нами показано, в аморфных лентах имеются две основные фазы — металлическая  $\alpha$ -(Fe,Cr) и боридная Fe<sub>3</sub>B, которые мешают друг другу расти, тем самым стабилизируя аморфное состояние сплава. Важнейшая роль в формировании сильно неоднородной среды принадлежит хрому. Благодаря склонности к фазовому расслоению ферромагнитного (FM) железа и антиферромагнитного (AFM) хрома в образцах, которое усиливается ионным облучением [7], железо концентрируется в центральных частях кластеров, а хром оттесняется к их периферии. Тем самым создаются конкурирующие FM и AFM магнитные взаимодействия, что понижает температуру Кюри до значений  $T_{\rm C} \le 172\,{\rm K}$  [7]. В таких сильно неоднородных и заведомо неоднофазных образцах, в которых кластеры не взаимодействуют или слабо взаимодействуют между собой [7] (после перехода образцов в FM состояние), возбуждение и существование спин-волновых мод является проблематичным. Тем более, что и в самих кластерах взаимодействие центров с неспаренными электронами реализуется при низких температурах,  $T < T_{\rm C} < 172 \, {\rm K}$ . Спектры же снимались при  $T=293~{
m K}$ , когда магнитное взаимодействие кластеров невозможно.

Следует еще напомнить о существовании спиновых волн в неферромагнитных металлах, находящихся в магнитном поле и связанных с колебаниями спиновой плотности электронов проводимости, обусловленных обменным взаимодействием между ними, однако для наблюдения спиновых волн этого типа необходимы низкие температуры [16].

Таким образом, независимо от магнитного состояния сильно неоднородной среды с кластерной структурой, возбуждение и распространение спиновых волн в ней

невозможно. Любые флуктуации, связанные с изменениями в конфигурации спинов, оказываются локализованными. Наиболее вероятная природа максимумов поглощения обусловлена многофазностью образцов, и не случайно любые изменения в спектрах, как было показано в разделе 3, следуют за изменениями структуры. Обычно, определение фазового состава аморфных сплавов наталкивается на многочисленные трудности. Однако, благодаря большому разнообразию хорошо выявляющихся диффузных максимумов на дифракционных картинах образцов (рис. 2), оказалось возможным уверенно идентифицировать имеющиеся в образцах фазы и выявить особенности изменений в структуре образцов при фазовых переходах в процессе ионного облучения.

Наиболее сложным в интерпретации спектров оказалось поведение линии (2) для образцов (s.II), в которых наблюдается сильное взаимодействие между фазами  $\alpha$ -Fe и Fe<sub>3</sub>B (рис. 3, a, b). В соответствии с фазовым распадом раствора эвтектического типа, в расплаве первыми образуются фрагменты плотноупакованных плоскостей  $(110)-\alpha-(Fe,Cr)$ , которые, с увеличением их размера, служат подложками для гетерогенного роста на них плоскостей фазы Fe<sub>3</sub>B. Когда концентрация оттесненного бора достаточна, растет фаза Fe<sub>3</sub>B. Это подтверждает триплетный вид главного максимума на дифракционной картине (рис. 2, d). Он представлен рядом расположенными отражениями  $(022 \, o\text{-Fe}_3 \text{B}) \rightarrow (110 \, \alpha\text{-Cr}; 110 \, \alpha\text{-Fe}) \rightarrow (221 \, o\text{-Fe}_3 \text{B}), \,\,$ для боридной, металлической и снова боридной фаз, по мере уменьшения межплоскостных расстояний в указанной структурной группе плоскостей. Выделение из линии (1) новой линии  $(2^{|})$  Fe<sub>3</sub>B после облучения образцов (s.II)(рис. 3, b) как раз и обусловлено некоторым обособлением фаз α-Fe и Fe<sub>3</sub>B при формировании AFM оболочки, обогащенной хромом, в процессе расслоения железа и хрома в кластерах. AFM оболочка  $\alpha$ -Cr выполняет роль прослойки между двумя FM фазами  $\alpha$ -Fe и Fe<sub>3</sub>B.

При отсутствии хрома в образцах  $Fe_{85}B_{15}$ , где температура Кюри  $T_{\rm C} > 300 \, {\rm K}$ , FM состояние должно способствовать наблюдению спиновых волн. Если отвлечься от тонкопленочной модели, то можно было бы ожидать два типа волн, связанных с фазами  $\alpha$ -Fe и Fe<sub>3</sub>B, но этого не происходит из-за неоднородности образцов, и ситуация оказывается далекой от рассмотренной в [15] для различных магнитных подрешеток. В нашем случае передача колебаний однотипным кластерам оказывается невозможной из-за того, что каждая из бикластерных группировок ( $\alpha$ -Fe + Fe<sub>3</sub>B) окружена разупорядоченной межкластерной прослойкой. При зарождении спиновой волны любые элементарные возбуждения в магнитоупорядоченном кластере оказываются локализованными внутри этого кластера, что однако не исключает межфазного взаимодействия при наличии структурной и кристаллографической совместимости кластеров α-Fe и Fe<sub>3</sub>B. Здесь наглядно проявляется роль периферийных областей: отсутствие в них антиферромагнитного хрома благоприятно сказывается на магнитном взаимодействии разнотипных кластеров, и в спектре наблюдается линия FMR (рис. 3).

Поведение линий (1) и (2) для образца (s.II) является важным свидетельством того, что основной причиной наблюдающейся асимметрии линий и изменений в их форме при ионном облучении являются изменения в магнитном взаимодействии кластеров, относящихся к разным фазам и обусловленные перестройкой кластерной структуры. Из рис. 3, b, по изменению линии (1), с отщеплением от нее линии ( $2^{|}$ ) при облучении, ясно, что асимметрия линии (1) в исходных образцах (s.II) обусловлена взаимодействием кластеров  $\alpha$ -Fe, Cr с кластерами Fe<sub>3</sub>B. То же самое относится и к ширине линий.

Используя хорошо изученное влияние ионного облучения на размер кластеров (размеры крупных группировок всегда уменьшаются при облучении), нами была предпринята попытка найти связь ширины линий с изменением размера кластеров. Было обнаружено, что при облучении образцов (s.I) наблюдается небольшое уширение линий (2) и (3), — на 10% и 25% соответственно, сопровождающееся сужением линии (1) на 14% (рис. 3,a). Для образцов (s.II) с более развитой кластерной структурой изменения более значительные: ширина линии (3) увеличивается втрое, а линия (1) сужается в 12 раз (рис. 3, b). Но наиболее примечательным является поведение линии (4). Несмотря на малые размеры атомных группировок ( $D = 10-20 \,\text{Å}$  [7]), ответственных за появление этой линии, ее ширина сопоставима с шириной остальных линий в спектрах исходных образцов (после облучения линия (4) исчезает). Отсутствие определенной связи между размером кластеров и шириной линий является ожидаемым. Как уже отмечалось, при формировании линий поглощения различные локальные магнитные моменты в кластерах взаимодействуют с внешним полем независимо друг от друга, и связь между шириной линий и размером кластеров может иметь только косвенный характер — через влияние размера кластеров на совершенство атомного порядка в этих группировках (чем больше кластер, тем совершеннее его структура), что влияет на эффективность взаимодействия магнитных центров с внешним полем и, соответственно, на магнитную восприимчивость образцов, ширину и интенсивность линий. Индивидуальная природа магнитных центров, участвующих в формировании спектров резонансного поглощения, наглядно проявляется при изучении реформирования локального атомного порядка (раздел 3.1) и изменений во взаимодействии группировок железа, хрома и Fe<sub>3</sub>B в процессе ионного облучения.

# 5. Заключение

Изучена связь между локальной атомной структурой исследуемого аморфного сплава и спектрами магнитного резонансного поглощения. Показано, что в многофазных образцах при малых размерах кластеров

 $(D < 250 \,\mathrm{\AA})$  фазы не взаимодействуют между собой, и в спектрах наблюдаются 4 линии. В образцах с более развитой кластерной структурой ( $D < 400 \, \text{Å}$ ) магнитные взаимодействия между кластерами  $Fe_3B$  и  $\alpha$ -( $Fe_3Cr$ ) приводят к формированию одной широкой линии. Для реализации магнитного взаимодействия кластеров необходимо прежде всего обеспечить их структурную и кристаллографическую совместимость. Ионное облучение способствует фазовому расслоению, формированию группировок с однотипными спинами и вызывает значительные изменения в кластерном магнетизме, проявляющиеся в увеличении интенсивностей линий (1), (2), (3) в спектрах. Исключение составляет линия (4), представляющая слабо локализованные спины: при разрушении облучением докластерных группировок (D < 20 Å)с ближним атомным порядком эта линия исчезает. Обособление атомных группировок с однотипными спинами при ионном облучении вызывает смещение FM линий (1) и (2) (для  $\alpha$ -Fe и Fe<sub>3</sub>B) в сторону меньших полей  $H_{\text{res}}$  и больших значений  $M_{\text{eff}}$ . И, наоборот, облучение смещает AFM линию (3) к большим  $H_{res}$  и меньшим  $M_{\rm eff}$ . Как показал анализ результатов, из-за структурной и магнитной неоднородности образцов природа всех линий в спектрах не связана с возбуждением спинволновых мод и обусловлена индивидуальной природой магнитных центров с нескомпенсированнми спинами в кластерах или в докластерных группировках. Ширина и форма линий в спектрах магнитного резонансного поглощения определяются характером взаимодействия кластеров различных фаз в образцах.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- Z.A. Samoilenko, V.D. Okunev, E.I. Pushenko, N.N. Pafomov, R. Szymczak, H. Szymczak, S.J. Lewandowski. J. Phys. Condens. Matter 19, 196218 (2007).
- [2] V.D. Okunev, Z.A. Samoilenko, A. Abal'oshev, A. Abal'osheva, P. Gierlowski, A. Klimov, S.J. Lewandowski, V.N. Varyukin, S. Barbanera, Phys. Rev. B 62, 696 (2000).
- [3] V.D. Okunev, Z.A. Samoilenko, N.N. Pafomov, A.L. Plehov, R. Szymczak, H. Szymczak, S.J. Lewandowski. Phys. Lett. A 373, 894 (2009).
- [4] V.D. Okunev, Z.A. Samoilenko, V.M. Svistunov, A. Abal'o-shev, E. Dinowska, P. Gierlowski, A. Klimov, S.J. Lewandowski. J. Appl. Phys. 85, 7282 (1999).
- [5] В.Д. Окунев, З.А. Самойленко, R. Szymczak, S.J. Lewandowski. ЖЭТФ **128**, 150 (2005).
- [6] В.Д. Окунев, З.А. Самойленко. Письма в ЖЭТФ **53**, 42 (1991).
- [7] В.Д. Окунев, З.А. Самойленко, R. Szymczak, H. Szymczak, A. Szewczyk, A. Malinowski, J. Więckowski, M. Wolny-Marszałek, M. Jeżabek, И.А. Антошина. ЖЭТФ 153, 945 (2018).

- [8] V.D. Okunev, Z.A. Samoilenko, A. Szewczyk, R. Szymczak, H. Szymczak, P. Aleshkevych, J. Więckowski, V.S. Khmelevskaya, I.A. Antoshina. J. Phys.: Condens. Matter 22, 296001 (2010).
- [9] V.D. Okunev, Z.A. Samoilenko, H. Szymczak, R. Szymczak, V.V. Burkhovetski, S.J. Lewandowski. J. Appl. Phys. 113, 164309 (2013).
- [10] Ж. Винтер. Магнитный резонанс в металлах. Мир, М. (1976). 288 с.
- [11] М.А. Ельяшевич. Атомная и молекулярная спектроскопия, Изд. 2-е. Эдиториал УРСС, М. (2001). 896 с.
- [12] С.В. Вонсовский. Магнетизм. Наука, М. (1971). 1032 с.
- [13] Y. He, Y. Sahoo, S. Wang, H. Luo, P.N. Prasad, M.T. Swihart. J. Nanoparticle Research 8, 335 (2006).
- [14] Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела. Наука, М. (1978). 792 с.
- [15] А.И. Ахиезер, В.Г. Барьяхтар, С.В. Пелетминский. Спиновые волны. Наука, М. (1967). 368 с.
- [16] В.П. Силин. Спиновые волны в неферромагнитных металлах, с. 344 в книге: А.И. Ахиезер, В.Г. Барьяхтар, С.В. Пелетминский. Спиновые волны. Наука, М. (1967). 368 с.

Редактор Д.В. Жуманов