

Проявления межгранульного взаимодействия в наногранулярных пленках $(\text{CoFeB})_x-(\text{SiO}_2)_{1-x}$ в температурных и угловых зависимостях коэрцитивности

С.М. Рябченко, А.А. Тимофеев, В.М. Калита, А.Ф. Лозенко, П.А. Троценко

Институт физики НАН Украины, пр. Науки, 46, г. Киев, 03028, Украина

E-mail: timopheev@iop.kiev.ua

В.А. Стефанович

Институт математики и информатики, Опольский университет, Олеска 48, 45-052 Ополье, Польша

М. Мунаката

Лаборатория энергетической электроники, университет Соёо, 860-0082, Япония

Статья поступила в редакцию 14 декабря 2009 г., после переработки 8 января 2010 г.

Для физически неперколерованных наногранулярных пленок $(\text{CoFeB})_x-(\text{SiO}_2)_{1-x}$ с ориентированной внутриплоскостной анизотропией гранул обнаружены особенности температурных (4,5–550 К) и угловых (в плоскости пленки) зависимостей коэрцитивного поля в сравнении с обусловленными блокированием термоактивированной переориентации магнитных моментов гранул. При температурах выше температуры блокировки, $T_b \approx 350\text{--}370$ К, обнаружена коэрцитивность, слабо зависящая от продолжительности времени измерения, в сравнении с зависимостью ниже T_b . Ее угловая (в плоскости пленки) зависимость качественно отличается от ожидаемой для заблокированных суперпарамагнитных частиц. Эти особенности объяснены возникновением при $T > T_b$ суперферромагнитного упорядочения магнитных моментов гранул из-за взаимодействия между ними. При понижении температуры ниже 100 К коэрцитивное поле H_c для намагничивания в легком направлении нарастает заметно сильнее, чем должно быть для заблокированного суперпарамагнитного ансамбля. При этом же возникает $H_c \neq 0$ для намагничивания вдоль трудного направления в плоскости. Угловая (в плоскости) зависимость H_c приобретает два максимума, вдоль легкого и трудного (в плоскости) направлений. Данное явление объяснено проявлением суперспинстекольных корреляций во взаимной ориентации магнитных моментов гранул ансамбля.

Для фізично неперколерованих наногранулярних плівок $(\text{CoFeB})_x-(\text{SiO}_2)_{1-x}$ з орієнтованою внутрішньо-площинною анізотропією гранул виявлено особливості температурних (4,5–550 К) і кутових (у площині плівки) залежностей коерцитивного поля в порівнянні з обумовленими блокуванням термоактивованої переорієнтації магнітних моментів гранул. При температурах вище температури блокування, $T_b \approx 350\text{--}370$ К, виявлена коерцитивність, що слабо залежить від тривалості часу виміру, у порівнянні з залежністю нижче T_b . Її кутова (у площині плівки) залежність якісно відрізняється від очікуваної для блокованих суперпарамагнітних частинок. Ці особливості пояснені виникненням при $T > T_b$ суперферромагнітного впорядкування магнітних моментів гранул через взаємодію між ними. При зниженні температури нижче 100 К коерцитивне поле H_c для намагнічування в легкому напрямку наростає помітно сильніше, ніж повинно бути для блокованого суперпарамагнітного ансамблю. При цьому ж виникає $H_c \neq 0$ для намагнічування уздовж важкого напрямку в площині. Кутова (у площині) залежність H_c набуває два максимуми, уздовж легкого і важкого (у площині) напрямків. Дане явище пояснено проявом суперспинстекольних кореляцій у взаємній орієнтації магнітних моментів гранул ансамблю.

PACS: **61.46.–w** Структура наномасштабных материалов;
 75.30.Gw Магнитная анизотропия;
 75.50.Tt Мелкодисперсные системы; нанокристаллические материалы;
 75.60.Ej Кривая намагничивания, гистерезис, эффект Баркхаузена и родственные эффекты;
 75.60.Jk Механизмы перемагничивания;
75.75.–c Магнитные свойства наноструктур.

Ключевые слова: наногранулярные ферромагнитные пленки, суперпарамагнетизм, суперферромагнетизм, суперспинстекольное состояние, коэрцитивность.

1. Введение

Наногранулярные (НГ) ферромагнетики — композитные материалы, состоящие из ферромагнитных (ФМ) металлических гранул нанометрового размера, внедренных в немагнитную матрицу. Ниже порога перколяции они проявляют суперпарамагнитные свойства, не блокированные выше температуры блокировки T_b и блокированные ниже ее. В качестве матриц используются как немагнитные металлы, так и диэлектрики. В последнем случае пленки имеют высокое электрическое сопротивление, проявляют туннельное магнитосопротивление (ТМС) ниже порога перколяции. Выше него они начинают вести себя как сплошные металлические ФМ пленки с низким сопротивлением, анизотропным магнитосопротивлением (АМС) и т.д. Представителями таких материалов являются гранулярные ФМ пленки типа $(\text{CoFeB})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ [1–4]. Ниже порога перколяции в них наблюдается ТМС [5], выше — АМС [6], а вблизи него — их совместное проявление [7].

Для систем с содержанием гранул ниже, но близкой к порогу перколяции начинает проявляться взаимодействие между гранулами. При ФМ типе взаимодействия его однородная составляющая приводит к ФМ корреляциям во взаимной ориентации магнитных моментов гранул и к суперферромагнитному (СФ) состоянию ниже некоторой температуры упорядочения T_{sf} . Неоднородная часть взаимодействия должна вести к корреляциям типа «замерзания» случайных конфигураций взаимной ориентации магнитных моментов гранул, подобных конфигурациям в спиновом стекле. В ансамбле ФМ частиц всегда присутствует магнитное диполь-дипольное взаимодействие, но может иметь место и некоторое обменное через межгранулярную среду. Ввиду случайного расположения гранул в матрице, дисперсии их размеров это взаимодействие в основном неоднородно и ведет к суперспинстекольному состоянию магнитного ансамбля. Вопрос о возможности однородной составляющей диполь-дипольного взаимодействия, которая приводила бы к упорядочению ФМ типа, уже давно дискутируется (например, [8–10]). Доминирующая точка зрения сводится к тому, что в большинстве, кроме отдельных специальных [10], случаев дипольное взаимодействие не приводит к устойчивому ФМ порядку. Обменное взаимодействие гранул, если оно есть, может иметь однородную составляющую, но может

также быть неоднородным, знакопеременным. Проявления сочетания однородной и неоднородной компонент взаимодействия, к тому же еще и с учетом термоактивированных переориентаций магнитных моментов гранул, не исследовано достаточно подробно ни экспериментально, ни теоретически.

Проявления взаимодействия между гранулами экспериментально изучено во многих работах (например, [11,13]) по динамическим магнитным свойствам НГ структур. В магнитоэлектрических исследованиях таких структур также проявляется взаимодействие между частицами (например, [14,15]), хотя эти исследования чаще посвящены эффектам блокировки переориентации намагниченности однодоменных ФМ гранул, связанной с этим температурной зависимостью коэрцитивности и остаточной намагниченности при разных типах магнитной анизотропии частиц. Наблюдались как «суперспинстекольные» [12], так и СФ [11] состояния.

Чаще всего рассматриваются НГ объекты со случайно ориентированной одноосной либо кубической анизотропией гранул. В пленках возникает еще и анизотропия пленки как целого, связанная с ее фактором размагничивания. Исследований пленок с ориентированной анизотропией в плоскости весьма мало, что, видимо, обусловлено трудностями их получения. Вместе с тем такое свойство пленок дает новые возможности для изучения взаимодействия гранул в сочетании с термоактивированными переориентациями их магнитных моментов.

В данной работе приведены результаты магнитоэлектрических измерений для НГ пленок $(\text{CoFeB})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ с ориентированной внутриплоскостной анизотропией в интервале температур от превышающих T_b до существенно более низких (от 500 К до гелиевых). Показано, что для таких пленок с концентрацией гранул, близкой, но ниже порога перколяции, имеются особенности в сравнении с ожидаемыми для ансамбля невзаимодействующих частиц в двух температурных областях: выше и вблизи температуры блокировки ($T_b \approx 350$ К) и в низкотемпературной (ниже 100 К). Высокотемпературная особенность объяснена нами как проявление СФ состояния ансамбля, обусловленного однородной составляющей взаимодействия между гранулами, с температурой упорядочения $T_{sf} > T_b$. При $T < T_b$ блокировка переориентаций магнитных моментов гранул

в потенциале, обусловленном их одноосной анизотропией, приводит к поведению, типичному для заблокированных суперпарамагнитных частиц, слабо возмущенных взаимодействием. И наконец, при $T < 100$ К становится возможной блокировка переориентаций моментов гранул в мелких метастабильных состояниях, связанных с множеством минимумов энергии различных взаимных ориентаций магнитных моментов гранул, вызванных неоднородной составляющей взаимодействия между ними. Эти минимумы подобны так называемому ультраметрическому потенциалу спинового стекла [20]. Таким образом, низкотемпературные аномалии коэрцитивности оказываются проявлением начала перехода к спинстекольной конфигурации взаимных ориентаций магнитных моментов гранул (суперспинстекольное состояние).

2. Образцы и методика эксперимента

Гранулярные ФМ пленки $(\text{Co}_{0,25}\text{Fe}_{0,66}\text{B}_{0,09})_x-(\text{SiO}_2)_{1-x}$ с толщинами около 500 нм на стеклянной подложке были выращены в университете Сойо (Япония) методом магнетронного распыления на подложку, закрепленную на вращающемся охлаждаемом барабане [16]. В результате в плоскости пленки формировалась ориентированная (т.е. одинаково направленная у всех гранул) внутрислойная одноосная анизотропия. Рентгеновские исследования [7] показали, что ФМ гранулы в этих пленках аморфны. Технологически также удается добиться достаточно малой дисперсии гранул по их размерам.

Намагниченная пленка такого типа имеет сильную легкоплоскостную (ЛП) анизотропию, однако для процесса перемагничивания пленки магнитным полем, лежащим в ее плоскости, магнитные моменты гранул не будут выходить из нее, и ЛП анизотропия не будет сказываться на виде кривых перемагничивания. Поэтому ниже порога перколяции такую пленку можно рассматривать, по отношению к перемагничиванию в плоскости, как ансамбль ориентированных осями анизотропии стонер-вольфартовских частиц (СВ частиц) [17]. Согласно соотношению Нееля–Броуна [18], температурная зависимость коэрцитивного поля H_c в таком ансамбле для намагничивания вдоль легкой оси должна иметь корневой характер:

$$H_c(T) = H_c(0) \left(1 - \sqrt{\frac{T}{T_b}} \right) \quad (1)$$

для $T < T_b$ и $H_c(T) = 0$ для $T > T_b$. Здесь

$$T_b = \frac{KV_p}{k \ln(t\nu_0)}, \quad H_c(0) = \frac{2K}{m_p} = H_a, \quad (2)$$

где K — константа одноосной анизотропии гранул, V_p — объем частицы (гранулы), m_p — ее намагниченность, k — постоянная Больцмана, t — время (длитель-

ность) измерения, ν_0 — фактор частоты проб в законе Аррениуса (обычно используют значения $10^8-10^{12} \text{ c}^{-1}$). При $T < T_b$ термоактивированные переориентации магнитных моментов гранул не успевают происходить в течение времени t . Они «блокированы», и состояние ансамбля метастабильно. А при $T > T_b$ равновесие успевает установиться за это время. Направление вдоль трудной оси является направлением неустойчивой ориентации магнитного момента частицы в отсутствие поля. Потому он не должен блокироваться в этом направлении, и коэрцитивность ориентированного ансамбля СВ частиц должна отсутствовать для намагничивания в этом направлении.

Температурная зависимость m_p может модифицировать зависимость (1). Для гранул типа CoFeB температуры Кюри T_C в зависимости от состава составляют 1000–1200 К [19]. Наши измерения относятся к $T < 500 \text{ К} \leq T_C/2$, поэтому при их интерпретации этим эффектом можно пренебречь. Изменение зависимости (1) может быть также связано с температурной зависимостью K . Приближение ансамбля СВ частиц также нарушается при заметном магнитном взаимодействии между ними.

Вид кривых перемагничивания ферромагнетика может сильно меняться в зависимости от соотношения между эффективным (вейссовским) полем взаимодействия $H_{\text{int}}^{\text{eff}}$, магнитными моментами вещества и характерного для него поля анизотропии H_a . Для НГ объектов такими моментами являются моменты гранул. Даже гранулы с линейным размером 4–5 нм содержат $\geq 10^3$ магнитных ионов, т.е. имеют очень большой магнитный момент $V_p m_p$. Поэтому температура $V_p m_p H_{\text{int}}^{\text{eff}} / k$, при которой должны проявляться эффекты взаимодействия, может оказаться сравнимой с T_b уже при $H_{\text{int}}^{\text{eff}} / H_a \approx [2 \ln(t\nu_0)]^{-1} \ll 1$ при временах t , характерных для экспериментов. При этом следует ожидать проявления взаимодействия в условиях, когда оно слабо искажает энергетический барьер для термоактивированной переориентации магнитных моментов гранул. Для объемных ФМ, где $H_{\text{int}}^{\text{eff}}$ — это поле взаимодействия между отдельными спинами, типично обратное соотношение $H_{\text{int}}^{\text{eff}} / H_a \gg 1$.

Магнитостатические измерения проводились на вибромагнитометре LDJ-9500 со стабилизацией температуры с точностью ± 1 К. Ферромагнитный резонанс (ФМР) измерялся на радиоспектрометрах X-диапазона. Основные измерения проводились на пленках с x ниже порога перколяции. Ряд измерений проведен на пленках с x выше порога, вплоть до $x \rightarrow 1$.

3. Результаты измерений

На рис. 1 показаны кривые перемагничивания образца с $x = 0,55$ при намагничивании в легком (кривая 1) и трудном (кривая 2) направлениях в плоскости при

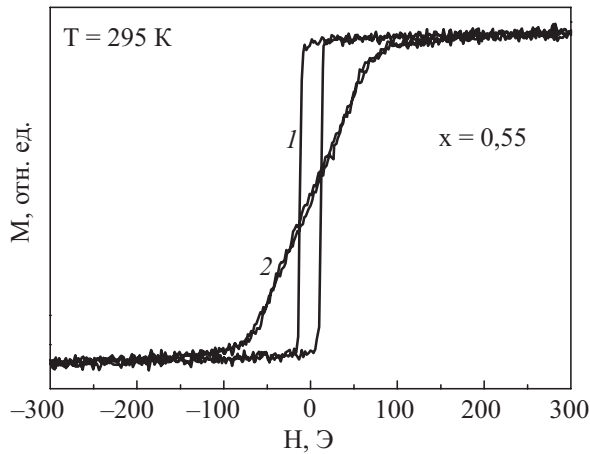


Рис. 1. Кривые перемагничивания для образца с $x = 0,55$ при $T = 295$ К: измерения вдоль легкого (1) и трудного (2) направлений в плоскости пленки.

$T = 295$ К. Как видно, кривая 1 имеет гистерезис с почти 100%-м отношением остаточной намагниченности M_r к намагниченности насыщения M_s . Кривая 2 безгистерезисная, линейная на участке $|H| < |H_a|$. Она претерпевает довольно резкий излом в поле анизотропии ($H_a = 87$ Э) и насыщается при $|H| > |H_a|$. Это указывает, что данная пленка представляет собой ансамбль однодоменных одноосно-анизотропных гранул, ориентированных легкими осями, с малой дисперсией, как по объему частиц, так и по их параметру анизотропии. Следовательно, ее можно рассматривать как ансамбль ориентированных СВ частиц. Величина M_s не меняется в интервале температур 4,4–360 К. Ее изменений не заметно и до 500 К, хотя при $T > 360$ К M_s определялась с худшей точностью. Эта пленка обладает довольно высоким удельным сопротивлением (150 мОм·см против 60 мкОм·см для объемного сплава [19]). В ней наблюдается эффект ТМС, не зависящий от взаимной ориентации поля \mathbf{H} и измерительного тока, т.е. не сопровождаемый АМС. Это подтверждает, что пленка состоит из изолированных друг от друга гранул, т.е. находится ниже порога перколяции. Атомное содержание материала гранул в пленке $x = 0,55$ должно соответствовать их относительному объемному содержанию $f_v \approx 0,26$. Однако как измерения намагничивания вдоль нормали к пленке, так и ФМР дают для нее $4\pi M_{\text{eff}} = f_v 4\pi m_p \cong \cong 9500$ Гс. Для объемного CoFeV с близким составом $4\pi M \cong 21000$ Гс [19], что должно соответствовать $4\pi m_p$. Таким образом, f_v в этой пленке составляет около 0,43. Данная цифра, хоть и отличается от ожидаемой при указанном технологами атомном составе, все равно ниже предела перколяции $f_v \approx 0,55$, часто указываемого в литературе (см., например, обзор [21]) для гранулярных пленок. Результаты, подобные показанным на рис. 1, получены при $T \approx 300$ К и на

пленке с номинальным $x = 0,60$, для которой измерения сопротивления и магнитосопротивления, а также величина $f_v \approx 0,47$, найденная из ее $4\pi M_{\text{eff}}$, также указывают на ее неперколированность. Отметим, что указанная величина предела перколяции $f_v \approx 0,55$ [21] превышает теоретически ожидаемую величину 0,33 для случайно расположенных сфер. Это, возможно, связано как с отличием взаимного расположения гранул от случайного, так и с возможным изолирующим металлооксидным слоем на поверхности гранул.

Интересными оказались данные о коэрцитивном поле H_c пленок, полученные при разных температурах. При $100 \text{ К} < T < 340 \text{ К}$ они создают впечатление, что зависимости $H_c(T)$ следуют уравнению (1). Однако выход за указанный интервал температур как в одну, так и в другую сторону показывает отклонения от него. Обсудим вначале область $110 \text{ К} < T < 500 \text{ К}$.

На рис. 2 показана зависимость $H_c^{\text{easy}}(\sqrt{T})$ пленки с $x = 0,55$ для намагничивания вдоль легкой оси при $T > 110$ К. Для намагничивания вдоль трудной (в плоскости) оси коэрцитивное поле, H_c^{hard} , в пределах точности измерений в этом интервале температур равно

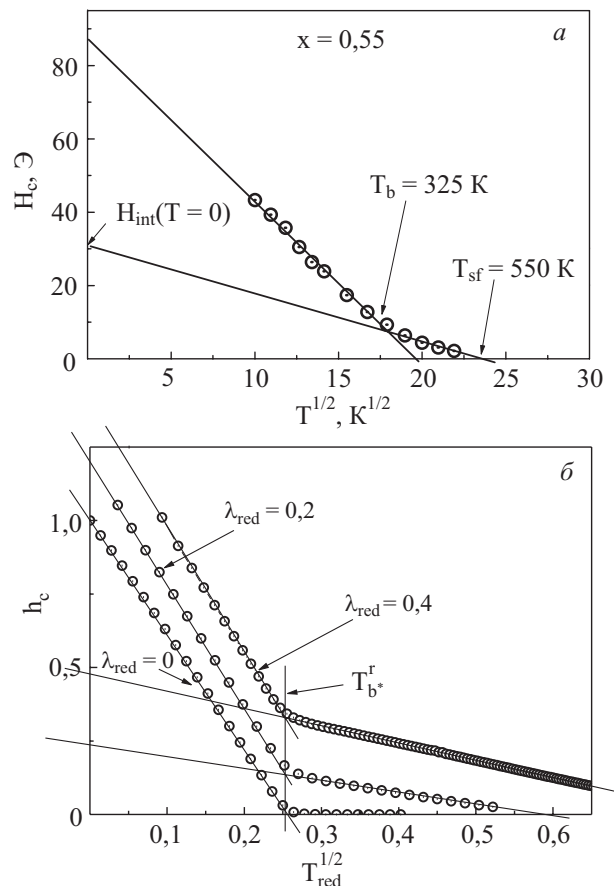


Рис. 2. а — Температурная зависимость коэрцитивного поля для образца с $x = 0,55$, полученная при намагничивании пленки в легком направлении в плоскости. б — Расчетные данные для температурной зависимости коэрцитивности при различных λ в зависимости от приведенной температуры.

нулю. Видно, что кривая $H_c^{\text{easy}}(\sqrt{T})$ содержит не один линейный участок, как ожидается из (1), а два с довольно четким перегибом между ними. Такая зависимость могла бы указывать на бимодальное распределение частиц ансамбля по величине T_b , т.е. по размерам либо по анизотропии частиц. Однако петли перемагничивания на более высокотемпературном участке остаются близкими к прямоугольным, чего не должно быть в этом случае. Для выяснения природы этого участка $H_c^{\text{easy}}(\sqrt{T})$ мы провели измерения данной зависимости при разных продолжительностях измерения кривых перемагничивания. Интервал полей от -500 до 500 Э и в обратную сторону разворачивался с временами $t_{\text{sweep}} = 1, 4, 16$ и 64 мин. Зависимости $H_c^{\text{easy}}(\sqrt{T})$ для $120 \text{ K} < T < 470 \text{ K}$ при разных t_{sweep} показаны на рис. 3,а. Как следует из формул (1), (2), увеличение времени измерения t , пропорционального t_{sweep} , должно уменьшать T_b и, следовательно, H_c^{easy} при любой $T < T_b$. При этом как относительное, так и абсолютное уменьшение H_c^{easy} должно быть тем больше, чем ближе к T_b избранная температура. Однако, как видно на рис. 3,а, снижение H_c^{easy} с удлинением t_{sweep} нарастает с ростом температуры только до перегиба в зависимости $H_c^{\text{easy}}(\sqrt{T})$ при $T \approx 360 \text{ K}$. Далее оно падает, почти прекращаясь к $T \approx 470 \text{ K}$. Формула (1) является приближенной в окрестности T_b . Реально H_c^{easy} не обращается в нуль при T_b , а спадает непрерывно, затягивая спад и в более высокие температуры (см., например, расчеты в [22,23]). На рис. 4,а представлена кривая относительного изменения H_c^{easy} при изменении t_{sweep} от 1 до 64 мин, а на рис. 4,б — аналогичная кривая, рассчитанная численным методом [23] для невзаимодействующих частиц с ориентированной анизотропией (кривая с $\lambda = 0$). Видно, что они качественно разные. Значит, заметная коэрцитивность на высокотемпературном линейном участке кривой рис. 2 и ее зависимость от t_{sweep} не объясняются в предположении бимодального распределения частиц по T_b . Указанные особенности поведения H_c^{easy} в области температур ее появления не удается объяснить и другими возможными свойствами невзаимодействующих суперпарамагнитных частиц.

Далее были проведены измерения петель перемагничивания при приложении поля H в плоскости пленки под различными углами φ к легкой оси намагничивания. Результаты для $T = 380 \text{ K}$ показаны на рис 5,а. Видно, что с ростом φ петли уширяются. На них появляются участки плавного изменения проекции намагниченности на направление поля и сохраняются участки ее резкой переориентации. С некоторого φ она начинает происходить при $|H| > |H_c|$. Зависимость $H_c(\varphi)$ имеет максимум $H_c(\varphi = \varphi_{\text{max}}) / H_c(\varphi = 0^\circ) \cong 2,5$ при $\varphi = \varphi_{\text{max}} = 65^\circ$. Такой ход $H_c(\varphi)$ качественно отличается от ожидаемого для невзаимодействующих ориентированных СВ частиц при низких температурах, пока-

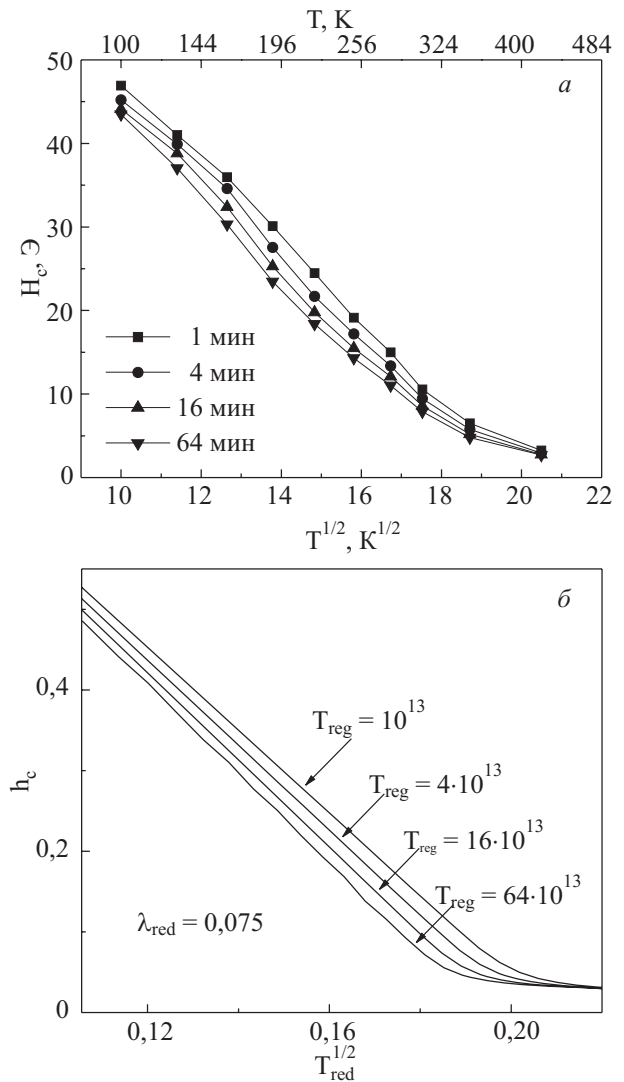


Рис. 3. Температурные зависимости коэрцитивного поля: а — для образца с $x = 0,55$, выполненные при разных временах измерения (время, необходимое для разворачивания магнитного поля от -500 до $+500$ Э и обратно); б — результаты моделирования для такого же соотношения времен, как в эксперименте.

занного на рис. 5,б пунктиром [17]. Расчеты методом Монте-Карло показывают, что и при температурах близких к T_b эта зависимость остается спадающей с максимумом при $\varphi = 0$. Из вставки к рис. 5,б видно, что $M_r(\varphi) / M_s \cong \cos \varphi$. Это означает, что намагниченность ансамбля остается однородной и при перемагничивании пленки под произвольными углами φ .

Известно [24], что зависимость $H_c(\varphi)$ может иметь максимум с $\varphi_{\text{max}} \neq 0^\circ$ при перемагничивании невзаимодействующих анизотропных частиц через их неоднородные магнитные состояния (так называемый «курлинг»). Если бы этот механизм имел место в нашем случае, то с понижением температуры поле $H_c(\varphi = 0) = H_c^{\text{easy}}$ переставало бы расти, ограничиваясь условиями возникновения курлинга. Однако, как видно на

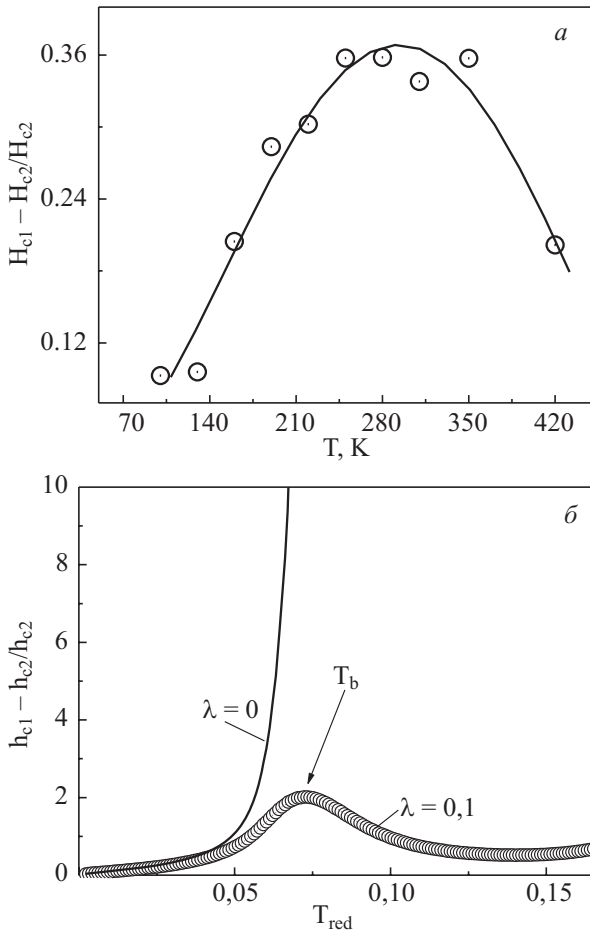


Рис. 4. Температурные зависимости относительного изменения H_c^{easy} для различных продолжительностей времени измерения: *a* — зависимость, полученная на основе экспериментальных данных рис. 3, *a*; H_{c1} и H_{c2} соответствуют значениям H_c^{easy} для времен t_{sweep} , равных 1 и 64 мин соответственно; *b* — расчетные кривые температурной зависимости относительного изменения коэрцитивного поля с изменением времени измерения без учета ($\lambda = 0$) и с учетом ($\lambda = 0,1$) межгранульного взаимодействия при $T_{\text{sf}} > T_b$.

рис. 2, $H_c(\varphi = 0)$ увеличивается при этом, как $\sqrt{T^{-1}}$, без тенденции к ограничению. При термоактивированном курлинге $H_c(\varphi = 0)$ могла бы возрастать с понижением температуры, но вид кривых $H_c(\varphi)$ не должен был бы меняться. Из рис. 6 видно, что возникновение максимума $H_c(\varphi)$ с $\varphi_{\text{max}} \neq 0^\circ$ в нашем образце — температурно-зависящий эффект, который нивелируется с понижением температуры. Вид $H_c(\varphi)$ при низкой температуре приближается к ожидаемому для заблокированного состояния суперпарамагнитных частиц с ориентированной анизотропией. Это еще раз подтверждает, что максимум $H_c(\varphi)$ при $\varphi_{\text{max}} \neq 0^\circ$ в данном случае связан с особенностями состояния ансамбля, а каждая из гранул в процессе перемагничивания сохраняет магнитную однородность.

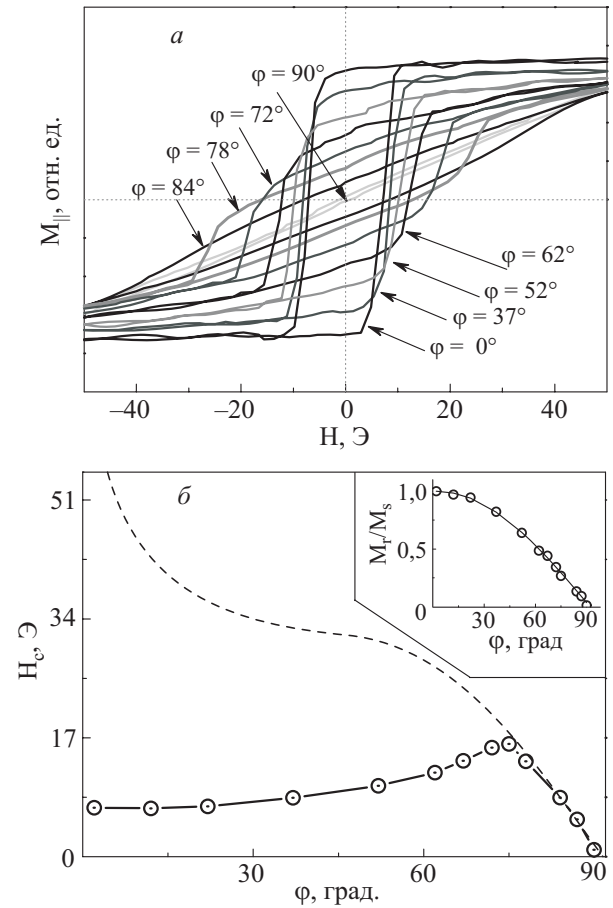


Рис. 5. *a* — Кривые перемагничивания при $T = 380$ К. *b* — Зависимость $H_c(\varphi)$ при $T = 380$ К (кружочки). Пунктирной линией показана расчетная зависимость $H_c(\varphi)$ ансамбля не взаимодействующих ориентированных СВ частиц. На вставке — угловая зависимость остаточной намагниченности образца при той же температуре.

Перейдем к результатам, полученным при $T < 110$ К. Зависимость $H_c^{\text{easy}}(\sqrt{T})$ для $4,2 \text{ К} < T < 300 \text{ К}$ в пленке с $x = 0,55$ показана на рис. 7, *a* (кривая 1). Ее линейность (соответствие уравнению (1)) реализуется только при $100 \text{ К} < T < 300 \text{ К}$. В этом интервале экстраполяция $H_c^{\text{easy}}(\sqrt{T})$ в $T = 0$ определяет поле анизотропии $H_a \approx 90$ Э, близкое к полученному из кривой 2 на рис. 1. Экстраполяции данного участка зависимости в $H_c = 0$ дает для данного образца $T_b \approx 370$ К. Это значение близко к температуре перегиба зависимости $H_c^{\text{easy}}(\sqrt{T})$, показанной на рис. 2, *a*. Но при $T < 100$ К кривая $H_c^{\text{easy}}(\sqrt{T})$ отклоняется от формулы (1) с приведенными выше значениями T_b и $H_c(0) = H_a$. Рост H_c усиливается, давая $H_c(4,5 \text{ К}) \approx 200$ Э (см. рис. 7, *a, б*).

Еще более примечательным оказалось качественное изменение кривых перемагничивания для трудного (в плоскости) направления (см., например, кривую 2 на рис. 7, *б* для $T = 4,5$ К). Вместо линейной безгистерезисной кривой (кривая 2 на рис. 1), типичной для ори-

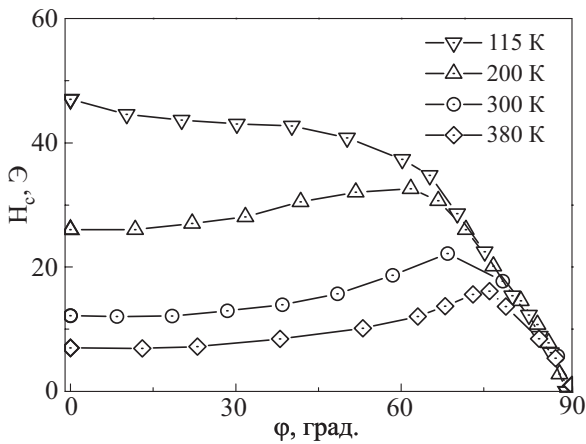


Рис. 6. Модификация зависимостей $H_c(\varphi)$ при понижении температуры. Символы — экспериментальные точки. Линии проведены для наглядности.

ентированных СВ частиц, намагничиваемых в трудном направлении, наблюдается «жесткая» петля гистерезиса с почти 100%-й величиной $M_r(\varphi)/M_s$. Напомним, что для ориентированных СВ частиц, намагничиваемых в трудном направлении, модификации кривых перемагничивания с понижением температуры в модели Нееля–Броуна происходить не должно.

Данный эффект не является особенностью только этой пленки. Измерения для образца (графики не приводятся) с несколько большим содержанием ФМ гранул ($x = 0,60$) дают аналогичный результат, хотя с несколько иными T_b и H_a . Образец с $x = 0,70$ находится уже выше порога перколяции. Часть гранул в нем уже образовала проводящие каналы. В его магнитосопротивлении наблюдается смесь АМС и ТМС. Последнее свидетельствует о том, что часть гранул остаются еще изолированными. Надо полагать, что направления намагниченностей ФМ областей и гранул в нем уже сильно коррелированы. Несмотря на это, при $T < 100$ К для него тоже возникает $H_c^{\text{hard}} \neq 0$, хотя и заметно меньшее, чем для пленок с $x = 0,55$ и $0,60$. В образцах с еще большими x , вплоть до $x \rightarrow 1$, коэрцитивное поле H_c^{hard} и аномальный низкотемпературный рост H_c^{easy} не возникают. Вид кривых перемагничивания с понижением температуры в них не видоизменяется. Таким образом, из описанных измерений следует, что аномальный низкотемпературный эффект в коэрцитивности наблюдается лишь в образцах с концентрацией гранул ниже и вблизи порога перколяции, т.е. связан со свойствами индивидуальных гранул либо их ансамбля вблизи порога перколяции.

Неожиданными оказались зависимости $H_c(\varphi)$ в области низких температур. Их вид показан на рис. 8. Как видно, зависимость $H_c(\varphi)$ приобрела два максимума. Кроме имевшегося при $T > 110$ К с $\varphi = 0$, возник дополнительный, с $\varphi = 90^\circ$, т.е. в трудном (в плоско-

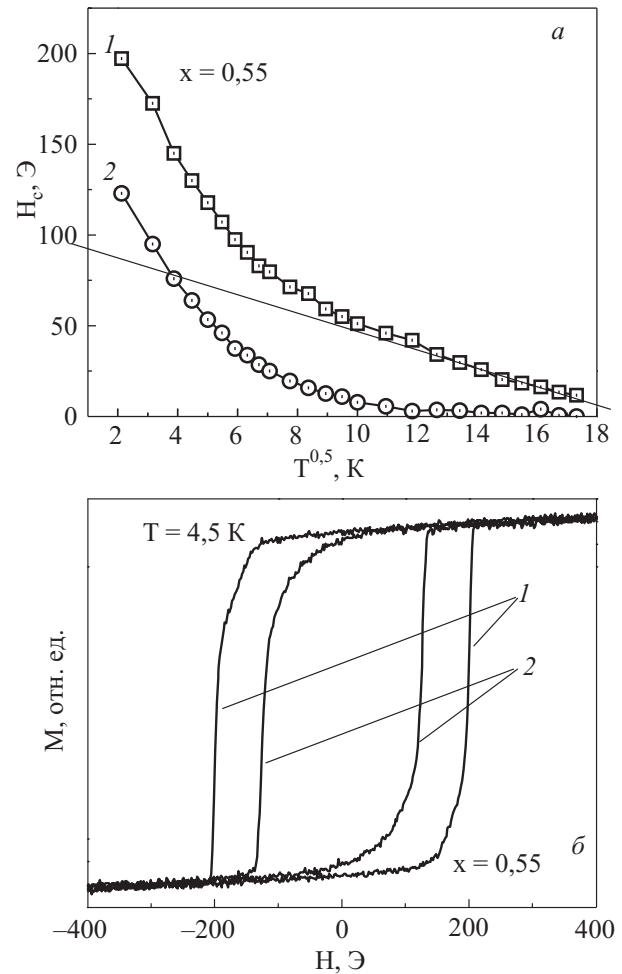


Рис. 7. *a* — Температурные зависимости коэрцитивного поля для образца с $x = 0,55$: измерения вдоль легкой (1) и трудной (2) осей. *б* — Кривые перемагничивания при $T = 4,5$ К вдоль легкого (1) и трудного (2) направлений в плоскости.

сти) направлении. Уже упоминалось, что для намагничивания ориентированного ансамбля СВ частиц в этом направлении коэрцитивность должна отсутствовать. Однородное и изотропное взаимодействие между магнитными моментами частиц не может изменить этого обстоятельства. Можно было бы предположить, что при понижении температуры у частиц возникает дополнительная анизотропия в плоскости, например, имеющая не π , а $\pi/2$ симметрию, либо проявляется анизотропия, связанная с антиферромагнитным металл-оксидным слоем на поверхности гранул. Анализ ожидаемой в этом случае зависимости $H_c(\varphi)$ показывает, что кривые на рис. 8 трудно согласовать с таким предположением. Тем не менее для его проверки мы провели измерения ФМР при различных направлениях поля в плоскости образца для разных температур. Угловые зависимости положений максимумов линий ФМР для образца с $x = 0,60$ для температур выше начала низко-

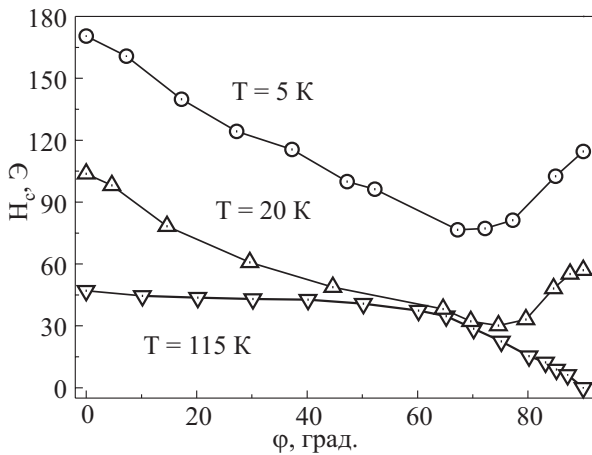


Рис. 8. Угловая зависимость H_c в пленке с $x = 0,60$ для температур 5, 20 и 115 К. Символы — эксперимент. Кривые проведены для наглядности.

температурной аномалии $H_c(\varphi)$ и в ее окрестности показаны на рис. 9.

Ферромагнитный резонанс в НГ пленках неоднократно исследовался и анализировался теоретически. Например, в работах [25,26] рассмотрено проявление в ФМР анизотропии формы гранул и анизотропии формы образца как целого при разных факторах f_v . В нашем случае спектры ФМР для различных направлений φ не проявляли каких-либо особенностей и могли описываться набором эффективных констант ЛП и внутрислойной анизотропий для пленки как целого. Все они хорошо описываются обычными решениями для ФМР в системе с сильной ЛП анизотропией и слабой одноосной внутрислойной. Первая описывается эффективным полем размагничивания $4\pi M_{\text{eff}}$, а вторая — плотностью энергии анизотропии $U_{a\phi} = -K_{\phi} \cos^2 \phi \cdot \sin^2 \theta_m$. Здесь ϕ — угол между проекцией намагниченности на плоскость и легкой осью, а θ_m — между намагниченностью и нормалью к пленке. Изменение кривых на рис. 9 с понижением температуры показывает, что как M_{eff} , так и $K_{\phi} = H_{a\phi} M_s / 2$ несколько возрастает с понижением температуры (здесь $H_{a\phi}$ — поле анизотропии в плоскости). Анализ этой слабой зависимости и ее причин выходит за рамки данной статьи. Мы же отметим, что спектры ФМР не содержат никаких признаков появления при низких температурах дополнительной анизотропии с периодичностью иной, чем π . А слабый рост K_{ϕ} с понижением температуры совершенно не достаточен, чтобы объяснить сильный рост H_c^{easy} при низких температурах.

Отметим сразу принципиальное отличие между измерениями ФМР и коэрцитивности. Первые проводятся в насыщающем магнитном поле с однородной равновесной намагниченностью образца. Коэрцитивность же проявляется в слабом, почти нулевом поле, когда намагниченность образца (и его отдельных гранул)

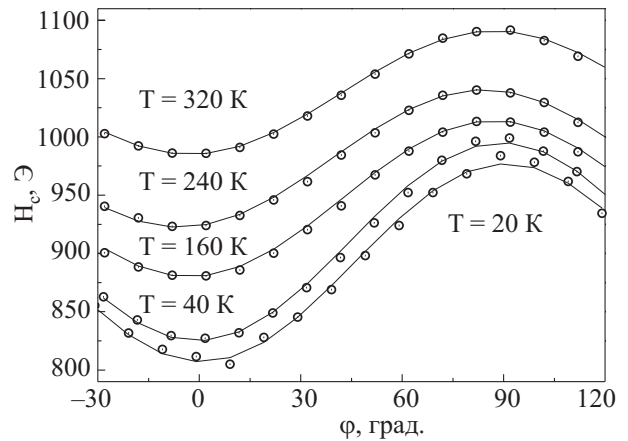


Рис. 9. Угловые зависимости положения максимума линии ФМР при различных температурах для магнитного поля, направленного в плоскости пленки под различными углами φ к легкой оси намагничивания. Точки — эксперимент. Кривые проведены для наглядности.

находится в метастабильном состоянии и удерживается барьерами от перехода к равновесию. С этой точки зрения, из сравнения угловых зависимостей $H_c(\varphi)$ и положений максимумов линий ФМР следует, что низкотемпературная аномалия $H_c(\varphi)$ связана с появлением не дополнительной анизотропии, а барьеров дополнительной природы для перехода намагниченности частиц от метастабильного к равновесному состоянию. На рис. 8 показано, что приращение H_c с понижением температуры наиболее сильно для направлений \mathbf{H} в легком и трудном (в плоскости) направлениях намагничивания. Для иных ориентаций оно вначале почти не выражено и даже при самых низких температурах остается более слабым. Таким образом, для объяснения эффекта необходимо найти причину возникновения дополнительных барьеров для перехода намагниченности частиц из метастабильного состояния к равновесному, которые были бы наиболее эффективны именно в этих направлениях намагничивания.

4. Обсуждение результатов

Причиной обнаруженных низкотемпературных эффектов могло бы быть изменение с температурой свойств ФМ материала гранул. Однако, как отмечалось, в области температур проведения измерений M_s пленок сохраняется. Также показано, что высокотемпературная особенность коэрцитивности и ее угловой зависимости не соответствует предположениям о бимодальном распределении частиц пленки по размерам или о их перемагничивании через неоднородное магнитное состояние. Что касается низкотемпературного эффекта ($T < 100$ К), то установлено, во-первых, что при x выше порога перколяции он сильно ослабляется.

А во-вторых — эффект не связан с появлением при низких температурах анизотропии другой симметрии. Можно было бы предполагать, что при низких температурах происходит частичная разориентация легких осей гранул в плоскости, выстроенных в процессе получения пленок. Это вело бы к появлению $H_c^{\text{hard}} \neq 0$, но без максимума $H_c(\varphi)$ вдоль этого направления. Кроме того, разориентация приводила бы к понижению M_r , чего не наблюдается. Вместе с тем, исследуемые пленки имеют составы, близкие к пределу перколяции. Поэтому вполне можно ожидать проявления взаимодействия между гранулами в их магнитных свойствах.

Уже отмечалось, что взаимодействие между гранулами обязательно включает неоднородную часть, связанную диполь-дипольному взаимодействию, а также случайному расположению гранул в пленке. Но может включать и однородную часть. Проявление этих двух составляющих взаимодействия может и должно быть различным, в том числе и в случае их одновременного присутствия. Далее мы покажем, что изложенные выше результаты в высокотемпературной области (250–500 К) могут быть описаны при рассмотрении однородного упорядочения магнитных моментов гранул в приближении самосогласованного поля [27,28], без детализации природы взаимодействия, ответственного за упорядочение. Интерпретация появления коэрцитивности, слабо зависящей от продолжительности времени измерения (данные рис. 2–4), как следствия СФ упорядочения магнитных моментов гранул при $T_{sf} \approx 550 \text{ К} > T_b \approx 370 \text{ К}$, уже описывалась нами в [29]. Поэтому более детально остановимся на интерпретации на той же основе зависимости $H_c(\varphi)$ в указанной области температур (рис. 5).

Учитывая, что ЛП анизотропия, связанная с фактором размагничивания пленки ($4\pi M_{\text{eff}} \approx 9500 \text{ Э}$), гораздо больше анизотропии гранул в плоскости, будем пренебрегать выходом намагниченности из плоскости пленки при перемагничивании. В приближении среднего поля для \mathbf{H} , лежащего в плоскости пленки ($\theta \equiv \theta_H = \pi/2$; θ — угол между полем и нормалью к пленке), энергию E и ее плотность U_{MF} для отдельной частицы запишем в виде

$$U_{MF} = -K \cos^2(\varphi - \varphi_m) - Hm_p \cos \varphi_m - \lambda m_p (\bar{m}_{\parallel} \cos \varphi_m + \bar{m}_{\perp} \sin \varphi_m); \quad E = U_{MF} V_p, \quad (3)$$

где K — константа анизотропии частицы (ей должна быть сопоставлена внутрислойная константа K_{ϕ} в нашей пленке ($\phi = \varphi - \varphi_m$), где, в отличие от чисто одноосной модели, есть еще ЛП анизотропия); φ_m — угол между намагниченностью частицы и \mathbf{H} в плоскости; $\bar{\mathbf{m}}$ — средняя (по ансамблю с учетом фактора f_v и на данный момент времени после изменения внешнего магнитного поля) намагниченность частицы, представ-

ленная двумя компонентами — параллельной \bar{m}_{\parallel} и перпендикулярной \bar{m}_{\perp} направлению \mathbf{H} ; λ — коэффициент пропорциональности между $\bar{\mathbf{m}}$ и однородным вкладом в самосогласованное поле. Будем полагать, что его неоднородная составляющая в рассматриваемой температурной области мала и/или усреднена быстрыми переориентациями магнитных моментов гранул.

Расчет равновесной зависимости средней намагниченности частиц ансамбля от поля в плоскости можно провести с помощью уравнения самосогласования для компонент $\bar{\mathbf{m}}$:

$$\bar{m}_{\parallel}^{\infty} = \frac{m_p}{Z} \int_0^{2\pi} \cos \varphi_m e^{-E_{\infty}/kT} d\varphi_m, \quad (4)$$

$$\bar{m}_{\perp}^{\infty} = \frac{m_p}{Z} \int_0^{2\pi} \sin \varphi_m e^{-E_{\infty}/kT} d\varphi_m, \quad (5)$$

где $\bar{m}_{\parallel}^{\infty}$ и \bar{m}_{\perp}^{∞} — равновесные значения \bar{m}_{\parallel} и \bar{m}_{\perp} соответственно, E_{∞} — энергия (3) с равновесными значениями $\bar{m}_{\parallel} = \bar{m}_{\parallel}^{\infty}$ и $\bar{m}_{\perp} = \bar{m}_{\perp}^{\infty}$; $Z = \int_0^{2\pi} e^{-E_{\infty}/kT} d\varphi_m$ — равновесная статистическая сумма.

Из уравнений среднего поля для бесконечно длинного времени наблюдения (т.е. для $T \gg T_b$) в отсутствие ЛП анизотропии и при $K \rightarrow 0$ и $H \rightarrow 0$ следует, что температура возникновения СФ состояния (с $\bar{\mathbf{m}} \neq 0$ при $\mathbf{H} \rightarrow 0$) равна $T_{sf} = \lambda m_p^2 / (3k)$ [28]. Для сильной ЛП анизотропии и при $K \rightarrow 0$ (2D случай) из (3)–(5) следует $T_{sf} = \lambda m_p^2 / (2k)$. При $K \gg \lambda m_p^2$ соответствующая температура равна $T_{sf} = \lambda m_p^2 / k$. Для сильной ЛП анизотропии и K , сравнимых с λm_p^2 , T_{sf} будет лежать между этими значениями. Для конечных времен наблюдения необходимо дополнительно решать задачу о величинах \bar{m}_{\parallel} и \bar{m}_{\perp} в заданном режиме изменения магнитного поля с учетом конечности времени наблюдения. Эта задача решалась численно в [29], в приближении Нееля [18] (термоактивированная переориентация магнитных моментов) для энергетического профиля, определяемого уравнением (3). Решение с использованием кинетического уравнения для зависящей от времени средней намагниченности ансамбля выполнялось для поля, направленного вдоль легкой оси ($\varphi = 0$). Из расчетов кривых перемагничивания при различных скоростях протяжки магнитного поля были получены кривые, показанные на рис. 2,б, 3,б и 4,б для температур близких к T_b . Совокупность этих кривых, обсужденная в [29], показывает, что расчет удовлетворительно описывает поведение H_c^{easy} при высоких температурах как следствие возникновения СФ состояния. Отсюда также следует, что температура возникновения коэрцитивности (550 К) должна рассмат-

риваться как T_{sf} , а температура перегиба зависимости $H_c^{easy}(\sqrt{T})$ — как T_b .

На указанных графиках использованы следующие безразмерные переменные: $h = H/H_a$, где $H_a = 2K/m_p$ (эквивалент $H_{a\phi}$) — поле анизотропии СВ частицы (предполагается, что $m_p = \text{const}$), $T_{red} = kT/(KV_p)$, $\lambda_{red} = \lambda m_p^2 / (2K)$, $\bar{m}_{red}^{\parallel} = \bar{m}_{\parallel} / m_p$, $\bar{m}_{red}^{\perp} = \bar{m}_{\perp} / m_p$ и аналогичные обозначения для их равновесных значений, $h_c(\phi) = H_c(\phi)/H_a$.

Рассмотрим угловую зависимость $H_c(\phi)$ в данной области температур. Полагая, что время измерения достаточно велико и эффектами блокировки можно пренебречь (реализуя тем самым случай $T_{sf} > T_b$), проведем моделирование кривых перемагничивания при $T_b < T < T_{sf}$, используя уравнения (3)–(5) и полагая $\bar{m}_{\parallel} = \bar{m}_{\parallel}^{\infty}$ и $\bar{m}_{\perp} = \bar{m}_{\perp}^{\infty}$. На рис. 10 приведены кривые $\bar{m}_{red}^{\parallel}(h)$ и $h_c(\phi)$, полученные численным решением уравнений (3)–(5) при $\lambda_{red} = 0,1$ и $T_{red} = 0,1$. Сравнение их с $M_{\parallel}(H)$, $H_c(\phi)$ (рис. 5) показывает хорошее соответствие.

При фазовых переходах I рода по магнитному полю в однодоменном ФМ уравнения самосогласования (3)–(5) позволяют получить ход зависимостей $\bar{m}_{red}^{\parallel}(h)$, $\bar{m}_{red}^{\perp}(h)$ вплоть до точек потери устойчивости ФМ фазы, т.е. в области метастабильности, где внешнее поле \mathbf{H} направлено против $\bar{m}_{red}^{\parallel}(h)$. Из решений находим кривые перемагничивания с $H_c \neq 0$. Возникает вопрос, что мы называем «равновесными намагниченностями», используемыми при решении уравнений? В равновесной термодинамике точка фазового перехода I рода определяется из условия равенства свободных энергий. Для рассматриваемого в нашей модели перехода I рода по магнитному полю ей должно отвечать поле $h = 0$. Однако одноосная анизотропия частиц «удерживает» метастабильное состояние, поскольку сумма эффективного поля взаимодействия и внешнего поля \mathbf{H} оказывается направленной вдоль намагниченности. И по отношению к суммарному полю намагниченность равновесна. Если взаимодействие между частицами доминирует над анизотропией ($H_{int}^{eff} / H_a \gg 1$, как в объемном ферромагнетике), то потеря устойчивости будет определяться полем H_a . В противоположном случае, реализующемся в нашей НГ пленке ($H_{int}^{eff} / H_a \ll 1$), метастабильное состояние будет сохраняться вплоть до поля полной потери его устойчивости, определяемого межчастичным взаимодействием. Решения уравнений (3)–(5) подтверждают это. Для $h_c(\phi)$ (рис. 10) они дают вид, соответствующий $H_c(\phi)$ (рис. 5). Экспериментальные результаты свидетельствуют о том, что «удерживаемая анизотропией» метастабильность СФ фазы является долгоживущей. Расчеты на основе уравнений (3)–(5) показывают, что если поле взаимодейст-

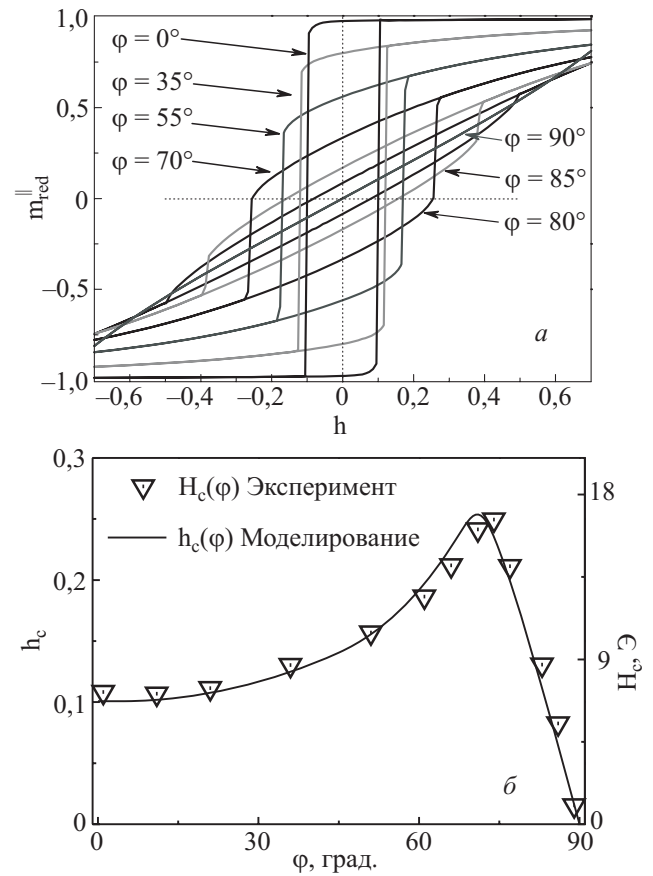


Рис. 10. а — Модельные кривые перемагничивания, полученные при $T_{red} = 0,1$, $\lambda_{red} = 0,1$. б — Зависимость $h_c(\phi)$, рассчитанная при этих же значениях параметров (сплошная линия). Треугольниками показаны экспериментальные данные $H_c(\phi)$ из рис. 5,б.

вия становится больше поля анизотропии частицы, т.е. $\lambda_{red} > 1$, то устойчивость СФ фазы будет определяться анизотропией и зависимость $h_c(\phi)$ будет соответствовать астроидам Стонера и Вольфарта [17].

Обратим внимание, что h_c совпадает с границей устойчивости СФ состояния лишь при углах $0 < \phi < \phi_{max}$. При $\phi_{max} < \phi < \pi/2$ $h = h_c(\phi)$ соответствует ориентации среднего магнитного момента перпендикулярно внешнему полю, а опрокидывание намагниченности происходит при $|h| > |h_c|$. Значение ϕ_{max} зависит от T_{red} и λ_{red} . Обсуждение этих зависимостей будет проведено отдельно. Качественное рассмотрение зависимости $h_c(\phi)$ при $T < T_b$ показывает, что роль малого по сравнению с H_a эффективного поля взаимодействия перестает быть существенной при блокировке. Метастабильность ориентации магнитных моментов гранул определяется теперь отношением времени наблюдения за системой к времени термоактивированной переориентации моментов частиц, т.е. изменение угловой зависимости $h_c(\phi)$ с температурой должно быть качественно таким, как в эксперименте

(см. рис. 6). Таким образом, поведение температурной и угловой зависимостей $H_c(\varphi)$ в окрестности T_b согласуется с представлением о том, что в исследуемых пленках наблюдается переход в СФ состояние с $T_{sf} > T_b$. Другие модели объяснения наблюдаемых явлений противоречат проведенным проверкам различного рода и не объясняют наблюдаемых явлений в их совокупности.

Обсудим теперь низкотемпературную аномалию коэрцитивности. При $T < T_b$ состояние ансамбля оказывается заблокированным и, в первую очередь, одночастичной анизотропией, поле которой превышает однородную составляющую эффективного поля взаимодействия между частицами. Если зависимость $H_c(\varphi)$ определяется профилем зависимости энергии частицы от угла φ в плоскости, соответствующем (3), для полей $|H| \leq H_c$, направленных в плоскости под углом φ к легкой оси, то, как уже указывалось, $H_c(\varphi = 90^\circ)$ должно быть нулем как в суперпарамагнитном, так и в СФ заблокированных состояниях. Но при $T < 100$ К H_c^{hard} оказывается отличным от нуля. Рассмотрение зависимостей $H_c(\varphi)$ при низких температурах приводит к мысли, что их можно ожидать в заблокированном состоянии, если представить, что упоминавшийся профиль угловой зависимости энергии частицы, кроме определяемого уравнением (3), содержит еще дополнительный вклад типа мелкой и частой ряби. Эта рябь будет дополнительно блокировать направления магнитного момента лишь при низких температурах, поскольку она мелкая. Кроме того, она будет наиболее эффективна вблизи направлений нулей производной по φ от основного профиля, т.е. вблизи легкого и трудного направлений намагничивания. Это обеспечит не только аномальный рост H_c^{easy} и появление $H_c^{\text{hard}} \neq 0$ с понижением температуры, но и максимум $H_c(\varphi)$ вдоль трудного (в плоскости) направления. Источником такой «ряби» может быть случайно ориентированное поле, вызванное неоднородной частью взаимодействия между частицами. Моделирование методом Монте-Карло кривых перемагничивания с добавлением к плотности энергии частицы (3) еще и вклада, описывающего такую «рябь», выбранного нами в виде

$$U_R(\varphi - \varphi_m) \equiv U_R(\varphi) = a \{ \cos[B(\varphi - \varphi_m)] \}^C K \equiv a [\cos(B\varphi)]^C K_\phi \quad (6)$$

с $B \gg 1$, $a \ll 1$ и произвольным $C \geq 1$, показывает (см. рис. 11,а), что при этом можно получить зависимости $H_c(\varphi)$, качественно подобные наблюдаемым и появляющиеся только при низких температурах, как в эксперименте. При более высоких температурах эти зависимости переходят в соответствующие заблокированному суперпарамагнитному (либо СФ, при соответствующем λ) состоянию. На рис. 11,б показан профиль φ -зависимости плотности энергии частицы с учетом

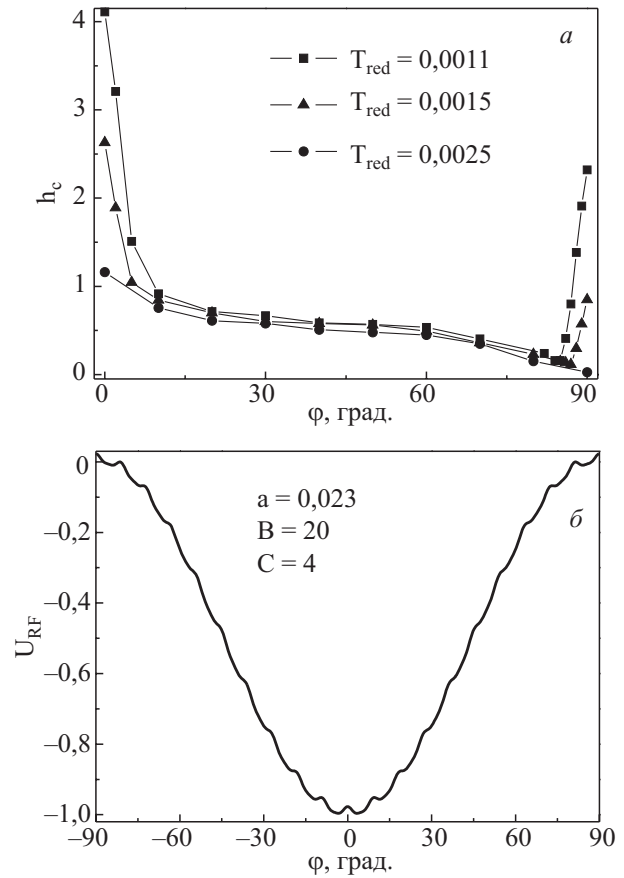


Рис. 11. а — Расчетные (Монте-Карло моделирование) угловые зависимости коэрцитивности для различных температур с использованием плотности магнитной энергии частицы, соответствующей уравнению (10) при параметрах случайного потенциала $A = 3,77$ ($a = 0,023$), $B = 20$, $C = 4$. б — Вид профиля φ -зависимости плотности магнитной энергии, определяемой уравнением (10) при $H_e = 0$ и $A = 3,77$ ($a = 0,023$), $B = 20$, $C = 4$.

вклада (6) для $H = 0$ и того же набора пробных параметров, что использовались для Монте-Карло моделирования, результаты которого показаны на рис. 11,а.

Обоснование эмпирически выбранного потенциала (6) как следствия случайной части поля взаимодействия удастся получить в приближении случайного поля [30,31]. Для этого рассмотрим ансамбль взаимодействующих СВ частиц, принимая во внимание неоднородную часть взаимодействия. Для упрощения рассмотрим, как и в уравнении (3), систему лишь с одноосной анизотропией. Выбирая для определенности направление приложенного магнитного поля H_e вдоль оси Z , совпадающей с направлением оси анизотропии, запишем гамильтониан системы в форме

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{ij} J(\mathbf{r}_{ij}) \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j - D \sum_i S_{iz}^2 + g \mu_B H_e \sum_i S_{iz}. \quad (7)$$

Здесь \mathbf{S}_i — вектор классического спина (безразмерного магнитного момента) i -й гранулы, $J(\mathbf{r}_{ij}) = J_{ij}$ — па-

параметр взаимодействия между гранулами, D — параметр одноосной анизотропии, g и μ_B — g -фактор и магнетон Бора соответственно. Природа J_{ij} может быть как обменной, так и магнитодипольной. В последнем случае J_{ij} может быть сравнимо с параметром анизотропии D , так что это взаимодействие может рассматриваться как многоионная анизотропия. Выражая спин-вектор гранулы \mathbf{S} через угловые переменные, $S_x + iS_y = S \sin \xi e^{i\eta}$, $S_z = S \cos \xi$ (здесь ξ — угол между магнитным моментом гранулы и Z , η — азимутальный угол, S — модуль вектора \mathbf{S}), плотность энергии частицы в приближении среднего поля (MF) можно записать в форме

$$U_{MF} = -K \cos^2 \xi - m_p (H_e + \lambda \bar{m}) \cos \xi, \quad (8)$$

полностью эквивалентной плотности энергии (3) для поля H_e , параллельного оси анизотропии.

Адекватное описание экспериментальной ситуации в рассматриваемом ансамбле СВ частиц может быть достигнуто, если принять во внимание случайность в направлении векторов \mathbf{S}_i и расстояний между частицами. Задачу можно рассматривать, используя так называемое приближение случайного поля (RF вместо MF), развитое ранее [30,31]. В этом приближении плотность энергии среднего поля (8) должна быть заменена выражением

$$U_{RF} = -K \cos^2 \xi - m_p \int_{-\pi/2}^{\xi} (H_l + \lambda \bar{m}) \cos \xi_1 \cdot f(\xi_1) d\xi_1. \quad (9)$$

Здесь $f(\xi)$ — функция распределения углов ξ ориентации магнитных моментов гранул, к которой приводит распределение локальных полей \mathbf{H}_l , действующих на гранулы ансамбля и включающих однородную и случайную (благодаря случайным направлениям магнитных моментов гранул) компоненты. Нижний предел интегрирования $-\pi/2$ соответствует отрицательному направлению Z . Заметим, что в RF методе намагниченность \bar{m} также зависит от ξ через процедуру самосогласования, см. подробнее в [30,31].

В RF приближении каждый спин (магнитный момент гранулы) выступает как источник флуктуирующего (случайного) поля $\mathbf{H}_{fi} = (g\mu_B)^{-1} \sum_{j(\neq i)} J_{ij} \mathbf{S}_j$, дей-

ствующего на другие гранулы с координатами r_j . Таким образом, каждый спин в данном приближении испытывает совместное воздействие внешнего и случайного (в отличие от среднего) поля, созданного другими частицами. Следовательно, все термодинамические свойства системы будут определяться функцией распределения $f(H_l) = f(H_{fi}) \propto f(\xi)$ случайного локального поля H_l . При этом любая макроскопическая величина, зависящая от спина (подобная намагниченности), будет описываться соотношением вида

$\langle A \rangle = \int \langle A \rangle_H f(H) d^3 H \equiv \int A(\xi) f(\xi) d\xi$, где $\langle A \rangle_H$ — ее одночастичное (т.е. с соответствующим (7) одночастичным гамильтонианом [30,31]) среднее значение. Определяя функцию распределения $f(H_l)$ как усреднение (по пространственному беспорядку и по проекциям S) вкладов δ -функций от различных источников случайного поля, метод RF [30,31] позволяет получить цепочку уравнений, которые дают в конце концов уравнение (9). Отметим, что вышеупомянутые усреднения в действительности учитывают многочисленные метастабильные конфигурации в случайном ансамбле магнитных гранул. В обычном спиновом стекле [20] эти метастабильные конфигурации ведут к так называемой ультраметрии в фазовом пространстве системы.

Подстановка в соответствующие уравнения (см. [30,31]) магнитного дипольного взаимодействия в качестве J_{ij} дает интегральное уравнение для $f(\xi)$, которое удастся решить лишь численно. Лучшей аппроксимацией для найденного решения оказывается логнормальное распределение. Подстановка его в (9) дает следующее выражение для U_{RF} :

$$U_{RF}(\xi, H_e) K^{-1} = -\cos^2 \xi + \exp[-A + C \log(\cos B\xi)] - m_p H_e K^{-1}, \quad (10)$$

где A , B и C — подгоночные параметры. Видно, что второе слагаемое в (10) переходит в (6) при $a = e^{-A}$ и замене ξ на ϕ . Таким образом, график $U_R(\phi)$, показанный (для $H = 0$) на рис. 11,б, является также и графиком $U_{RF}(\xi, H_e = 0)$. Он имеет пилообразный профиль зависимости от ξ (и/или от ϕ) и напоминает типичную ультраметрическую картину, см., например, [20].

Для сопоставления с экспериментом надо сравнивать экспериментальную зависимость $h_c(\phi, \theta = \pi/2)$ с эквивалентной расчетной, вычисленной на основе теоретической модели. Хотя теоретическое рассмотрение делалось для \mathbf{H}_e вдоль легкой оси, будем полагать, что вид второго слагаемого в (10) сохраняется и для других направлений внешнего поля, заменяя в (10) ξ на ϕ и подставляя вместо зеемановского (третьего) слагаемого в (10) второе (в скобках) слагаемое из (3). Это приближение не должно влиять на качественное содержание результатов.

Вычисления $h_c(\phi, \theta = \pi/2)$ методом Монте-Карло показывают, что влияние «зубов» на профиле $U_R(\phi)$ (уравнение (6)) с амплитудой, пропорциональной параметру a , на расчетную величину $h_c(\phi, \theta = \pi/2)$ зависит от направления ϕ прикладываемого магнитного поля. В области очень малых значений a или при высоких температурах, когда направление магнитного момента частицы не блокируется зубчатым профилем $U_R(\phi)$, угловая зависимость $h_c(\phi, \theta = \pi/2)$ сохраняет один максимум при $\phi = 0$. При увеличении a (или уменьшении T) $h_c(\phi, \theta = \pi/2)$ приобретает дополнительные вклады вначале в области нулевых производ-

ных по ϕ исходного профиля $U_0 = -\cos^2 \phi$ (или $U_0 = -\cos^2 \xi$ в уравнении (10)). Возникает $H_c^{\text{hard}} \neq 0$. Коэрцитивность в легком направлении тоже растет, в то время как в промежуточных углах сохраняется такой же, как и в отсутствие $U_R(\phi)$. Это происходит потому, что в этих направлениях зубчики еще не блокируют повороты магнитных моментов частиц. В результате появляется дополнительный максимум $h_c(\phi, \theta = \pi/2)$ при $\phi = \pi/2$. При больших $a \sim 1$ возникает сильный рост коэрцитивности при всех ϕ и угловая зависимость $h_c(\phi, \theta = \pi/2)$ исчезает. Параметры B и C определяют остроту «зубчиков». Их подбором можно приблизить вид расчетной угловой зависимости к экспериментальной, хотя очень хорошего соответствия добиться трудно. Это, видимо, связано с упрощенным характером модели, которая не содержит учета возможной зависимости зубчиков от направления и величины внешнего поля. Уже отмечалось, что в насыщающих магнитных полях следует ожидать подавления квазиультраметрического (зубчатого) профиля $U_R(\phi)$, что приводит к отсутствию его проявления в измерениях ФМР. 5

5. Заключение

Обнаружены особенности в температурной и угловой зависимостях коэрцитивного поля для наногранулярных пленок $(\text{Co}_{0,25}\text{Fe}_{0,66}\text{B}_{0,09})_x-(\text{SiO}_2)_{1-x}$ с ориентированной внутриплоскостной анизотропией в области температур выше T_b . Эффект объяснен возникновением суперферромагнитного состояния ансамбля ферромагнитных наночастиц за счет однородной составляющей взаимодействия между ними. Показано, что аномальная угловая зависимость коэрцитивного поля определяется границами устойчивости СФ состояния во внешнем поле, противоположенном эффективному самосогласованному полю этого состояния, сформированному до перемены знака внешнего поля в процессе перемагничивания. Этот результат связывается с тем, что для рассматриваемого СФ состояния данное эффективное поле оказывается меньше поля анизотропии отдельной гранулы. Установлено, что блокировка термоактивированной перероентации магнитных моментов гранул подавляет проявления коэрцитивности СФ состояния.

Для этих же пленок обнаружен эффект аномального низкотемпературного роста коэрцитивного поля и изменения его угловой (в плоскости) зависимости в заблокированном состоянии. Показано, что он не связан с появлением анизотропии с иным типом симметрии. Эффект объяснен на основе представлений о возникновении суперспинстекольных корреляций за счет неоднородной составляющей взаимодействия между гранулами.

Таким образом, в исследованных пленках с ориентированной внутриплоскостной анизотропией и кон-

центрацией магнитных гранул, хотя и ниже, но близкой к порогу перколяции, наблюдаются одновременные проявления как однородной, так и неоднородной составляющих межгранульного взаимодействия.

Работа частично поддержана грантом 10-07-Н программы НАН Украины «Наноструктурные системы, наноматериалы, нанотехнологии» и грантом Ф28/049 Фонда фундаментальных исследований Украины.

1. M. Munakata, M. Yagi, and Y. Shimada, *IEEE Trans. Magn.* **35**, 3430 (1999).
2. M. Yamaguchi, K. Hyeon Kim, and S. Ikeda, *J. Magn. Magn. Mater.* **304**, 208 (2006).
3. M. Munakata, M. Namikawa, M. Motoyama, M. Yagi, T. Ito, Y. Shimada, M. Yamaguchi, and K.I. Arai, *Trans. Magn. Soc. Jpn.* **2**, 388 (2002).
4. L. Deng, Z. Feng, J. Jiang, and H. He, *J. Magn. Magn. Mater.* **309**, 285 (2007).
5. Y.E. Kalinin, A.V. Sitnikov, O.V. Stognei, I.V. Zolotukhin, and P.V. Neretin, *Mat. Sci. Eng.* **A304**, 941 (2001).
6. D. Wang, C. Nordman, Z. Qian, J.M. Daughton, and J. Myers, *J. Appl. Phys.* **97**, 10C906 (2005).
7. P. Johnsson, S.I. Aouqi, A.M. Grishin, and M. Munakata, *J. Appl. Phys.* **93**, 8101 (2003).
8. J.M. Luttinger and L. Tisza, *Phys. Rev.* **70**, 954 (1946).
9. Е.З. Мейлихов, Р.М. Фарзетдинова, *ЖЭТФ* **121**, 908 (2002).
10. Y.G. Pogorelov, G.N. Kakazei, M.D. Costa, and J.B. Sousa, *J. Appl. Phys.* **103**, 07B723 (2008).
11. S. Bedanta, O. Petravic, E. Kentzinger, W. Kleemann, U. Rucker, A. Paul, Th. Brückel, S. Cardoso, and P.P. Freitas, *Phys. Rev.* **B72**, 024419 (2005).
12. W. Kleemann, O. Petravic, C. Binek, G.N. Kakazei, Y.G. Pogorelov, J.B. Sousa, S. Cardoso, and P.P. Freitas, *Phys. Rev.* **B63**, 134423 (2001).
13. S. Bedanta and W. Kleemann, *J. Phys.* **D42**, 013001 (2009).
14. M. El-Hilo, R.W. Chantrell, and K. O'Grady, *J. Appl. Phys.* **84**, 5114 (1998).
15. M. Knobel, W.C. Nunes, L.M. Socolovsky, E. De Biasi, J.M. Vargas, and J.C. Denardin, *J. Nanosci. Nanotech.* **8**, 2836 (2008).
16. O. Kohmoto, M. Munakata, N. Mineji, and Y. Isagawa, *Mat. Sci. Eng.* **A375**, 1069 (2004).
17. E.C. Stoner and E.P. Wohlfarth, *Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A*, **240**, 599 (1948).
18. L. Néel, *Ann. Geophys.* **5**, 99 (1949).
19. S.I. Aouqi and M. Munakata, *Mat. Sci. Eng.* **A413–414**, 550 (2005).
20. M. Mezard and M.A. Virasoro, *J. Phys. (France)* **46**, 1293 (1985).
21. C.L. Chien, *Ann. Rev. Mat. Sci.* **25**, 129 (1995).
22. A.A. Timopheev and S.M. Ryabchenko, *Ukr. J. Phys.* **53**, 261 (2008).
23. А.А. Тимофеев, В.М. Калита, С.М. Рябченко, *ФНТ* **34**, 560 (2008) [*Low Temp. Phys.* **34**, 446 (2008)].

24. A. Aharoni, *J. Appl. Phys.* **82**, 1281 (1997).
25. U. Netzelmann, *J. Appl. Phys.* **68**, 1800 (1990).
26. G.N. Kakazei, A.F. Kravets, N.A. Lesnik, M.M. Pereira de Azevedo, Y.G. Pogorelov, and J.B. Sousa, *J. Appl. Phys.* **85**, 5654 (1990).
27. S. Mørup, *Hyperfine Interactions* **60**, 959 (1990).
28. S. Mørup, *Hyperfine Interactions* **90**, 171 (1994).
29. A.A. Timopheev, S.M. Ryabchenko, V.M. Kalita, A.F. Lozenko, P.A. Trotsenko, V.A. Stephanovich, A.M. Grishin, and M. Munakata, *J. Appl. Phys.* **105**, 083905 (2009).
30. Yu.G. Semenov and V.A. Stephanovich, *Phys. Rev.* **B66**, 075202 (2002).
31. Yu.G. Semenov and V.A. Stephanovich, *Phys. Rev.* **B67**, 195203 (2003).

Manifestation of intergranular interactions in nanogranular films of $(\text{CoFeB})_x\text{-(SiO}_2\text{)}_{1-x}$ in temperature and angular dependences of coercivity

S.M. Ryabchenko, A.A. Timopheev, V.M. Kalita, A.F. Lozenko, P.A. Trotsenko, V.A. Stephanovich, and M. Munakata

The physically nonpercolated nanogranular films of $(\text{CoFeB})_x\text{-(SiO}_2\text{)}_{1-x}$ with the oriented intraplane anisotropy of granules display unusual properties of temperature (4.5–550 K) and angular (in the film plane) dependences of coercive fields as compared to those caused by blocking thermoactivated reorientation of the granule magnetic moments. At temperatures above the blocking temperature $T_b \approx 350\text{--}370$ K a noticeable coercivity weakly dependent on measurement

duration is observed as opposed to a similar dependence at temperatures below T_b . Its angular (in the film plane) dependence differs qualitatively from that expected for the blocked superparamagnetic particles. These features are explained by the superferromagnetic ordering of the magnetic moments of granules occurred due to the interaction between them at $T > T_b$. With decreasing temperature below 100 K, the coercive field H_c for magnetization in the easy direction grows substantially more, than expected for the blocked superparamagnetic ensemble. Simultaneously, there occurs $H_c \neq 0$ for magnetization along the hard direction in the plane. The angular (in the plane) dependence of H_c acquires two maxima, along easy and hard (in the plane) directions. The above phenomenon is explained by the manifestation of superspinglass correlations in mutual orientations of the magnetic moments of granules in the ensemble.

PACS: **61.46.-w** Structure of nanoscale materials;
 75.30.Gw Magnetic anisotropy;
 75.50.Tt Fine-particle systems; nanocrystalline materials;
 75.60.Ej Magnetization curves, hysteresis, Barkhausen and related effects;
 75.60.Jk Magnetization reversal mechanisms;
75.75.-c Magnetic properties of nanostructures.

Keywords: nanogranular ferromagnetic film, superparamagnetism, superferromagnetism, superspinglass state, coercivity.