

# Эффект медленной ионной релаксации при ферромагнитном резонансе в металл-диэлектрическом нанокompозите $\text{CoFeB-LiNbO}_3$

А. Б. Дровосек<sup>+1)</sup>, Н. М. Крейнс<sup>+</sup>, А. С. Баркалова<sup>+\*</sup>,  
С. Н. Николаев<sup>×</sup>, А. В. Ситников<sup>°</sup>, В. В. Рьльков<sup>×∇</sup>

<sup>+</sup>Институт физических проблем им. П. Л. Капицы РАН, 119334 Москва, Россия

<sup>\*</sup>Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, 101000 Москва, Россия

<sup>×</sup>Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

<sup>°</sup>Воронежский государственный технический университет, 394026 Воронеж, Россия

<sup>∇</sup>Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, 141190 Фрязино, Россия

Поступила в редакцию 28 мая 2020 г.

После переработки 3 июня 2020 г.

Принята к публикации 4 июня 2020 г.

Пленки металл-диэлектрического нанокompозита  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  исследованы методом ферромагнитного резонанса в диапазоне температур 4 – 320 К. В области низких температур обнаружено наличие максимума ширины линии ферромагнитного резонанса и отрицательный динамический сдвиг пика поглощения, характерные для механизма медленной ионной релаксации на магнитных примесях. Наблюдаемые особенности магнитной релаксации могут быть вызваны парамагнитными ионами Co и Fe, диспергированными в диэлектрической матрице  $\text{LiNbO}_3$  и связанными обменом с ферромагнитными гранулами  $\text{CoFeB}$ . Экспериментальные температурные зависимости ширины и сдвига линии ФМР хорошо согласуются с теоретическими кривыми, полученными в рамках предложенного подхода.

DOI: 10.31857/S1234567820140049

Гранулированный металл-диэлектрический нанокompозит (НК) состава  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  представляет собой синтетический мультиферроик, привлекающий большой интерес в связи с потенциальными возможностями нетривиальных магнитоэлектрических эффектов [1]. Недавно было показано, что данный НК является перспективным материалом с точки зрения реализации элементов резистивной памяти (мемристоров), моделирующих функции синапсов в нейроморфных сетях [2–4].

Исследования магнитной динамики в металл-диэлектрических НК привлекают внимание как с фундаментальной, так и с прикладной точек зрения. Возможность сочетания высокого удельного сопротивления и высокой магнитной проницаемости в гранулированных системах делает их привлекательными для применения в высокочастотных микроэлектронных устройствах [5]. С другой стороны, такие структуры являются интересными модельными объектами для исследования влияния параметров отдельных частиц и межчастичных взаимо-

действий на динамические характеристики системы, в частности, на механизмы магнитной релаксации.

В нашей предыдущей работе [6] методом ферромагнитного резонанса (ФМР) при комнатной температуре исследовались механизмы уширения резонансного пика в пленках НК  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  при изменении концентрации ферромагнитной (ФМ) фазы  $x$  в окрестности перехода металл-изолятор  $x_c \approx 43$  ат.%. Было показано, что в исследуемом диапазоне  $x = 27 - 48$  ат.% преобладают механизмы уширения линий ФМР, обусловленные особенностями магнитной неоднородности пленок. При этом в области малых концентраций  $x < x_c$  спектр ФМР можно описать в рамках предположения независимых ФМ гранул со случайным распределением одноосной анизотропии в плоскости пленки. В то же время при больших  $x > x_c$ , в условиях проявления логарифмической температурной зависимости проводимости [7], ширина линии ФМР определяется в основном процессами двухмагнетонного рассеяния, свидетельствуя о наличии существенной туннельной связи между ФМ гранулами.

<sup>1)</sup>e-mail: drovosekov@kapitza.ras.ru

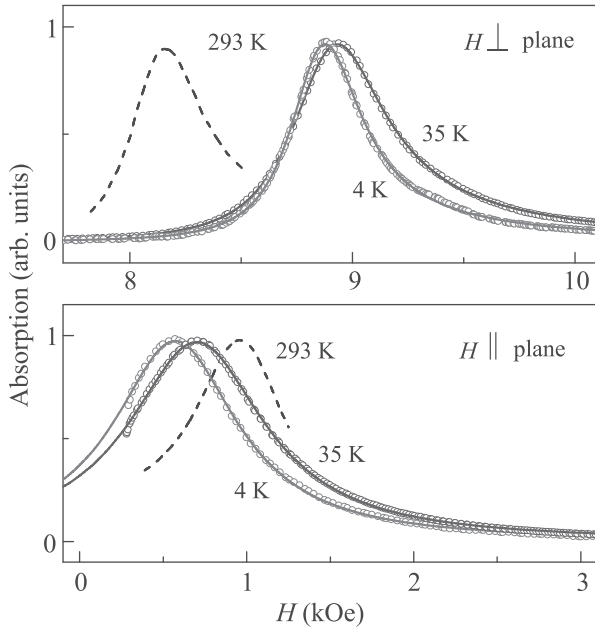


Рис. 1. (Цветной онлайн) Спектры ФМР (поглощаемая мощность как функция магнитного поля) при нескольких температурах для пленки  $(\text{CoFeB})_{0.48}(\text{LiNbO}_3)_{0.52}$  в нормальном и касательном поле на частоте  $f = 7.65$  ГГц

В настоящей работе мы исследуем температурные зависимости положения ( $H_{\text{res}}$ ) и ширины ( $\Delta H$ ) линии ФМР в пленках  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  с различной концентрацией ФМ фазы  $x$ . На рисунке 1 показаны примеры экспериментальных спектров ФМР для одного из исследуемых образцов. Рисунки 2–4 иллюстрируют температурную эволюцию параметров резонансного пика для пленок с  $x \approx 48$  и 34 ат. % в геометрии “поле в плоскости” ( $H_{\parallel}$ ) и “поле нормально плоскости” ( $H_{\perp}$ ). Для характеристики ширины резонансной кривой используется величина  $\Delta H$  – “полуширина на полувысоте”.

Для обоих образцов поведение  $H_{\text{res}}(T)$  выглядит похожим образом (рис. 2). В области высоких температур  $T \gtrsim 60$  К поле  $H_{\parallel}$  растет с повышением температуры, а  $H_{\perp}$  – падает. В соответствии с известными формулами Киттеля, такое поведение на качественном уровне можно объяснить простым уменьшением намагниченности пленки с температурой. Однако при охлаждении ниже  $T \approx 60$  К поле резонанса уменьшается в обеих экспериментальных геометриях (рис. 1 и 2), что невозможно объяснить на основании простых формул Киттеля для тонкой ФМ пленки. Аномальное поведение в области низких температур можно описать в предположении наличия дополнительного сдвига линии

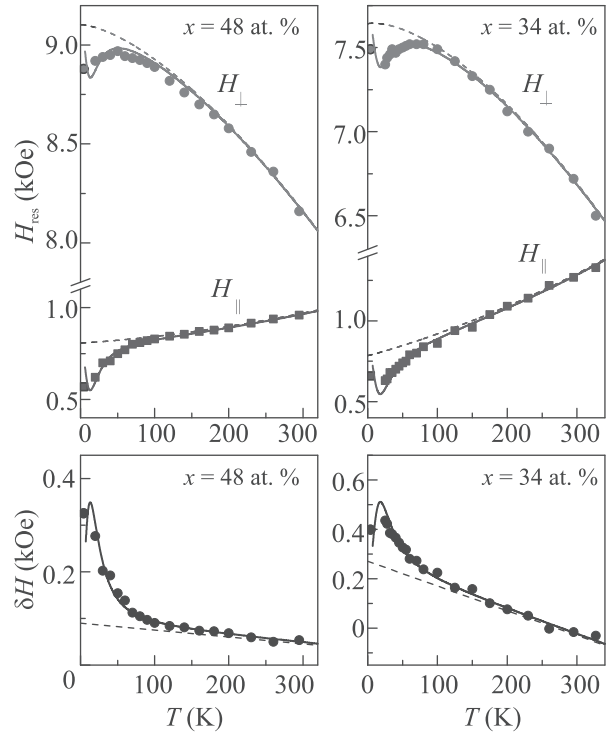


Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурные зависимости поля резонанса для пленок  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  с  $x \approx 48$  и 34 ат. % в нормальном и касательном поле на частоте  $f = 7.65$  ГГц и результирующие зависимости сдвига пика поглощения  $\delta H(T)$ . Точки – эксперимент, сплошные и штриховые линии – расчет с учетом вклада ионной релаксации и без него

ФМР  $\delta H$ , который приводит к модификации формул Киттеля:

$$\omega/\gamma = H_{\perp} + \delta H - 4\pi M_{\text{eff}}, \quad (1)$$

$$(\omega/\gamma)^2 = (H_{\parallel} + \delta H)(H_{\parallel} + \delta H + 4\pi M_{\text{eff}}), \quad (2)$$

где  $\omega = 2\pi f$  – частота возбуждения резонанса,  $\gamma$  – гиромагнитное отношение ( $\gamma/2\pi = 2.95$  ГГц/кЭ, согласно [6]),  $4\pi M_{\text{eff}}$  – эффективное поле размагничивания пленки.

Известно, что такой сдвиг линии может возникать в случае поликристаллических (либо гранулярных) образцов, а также как поправка к резонансному полю при учете релаксации магнитных колебаний на парамагнитных примесях [8].

На основании экспериментальных данных для  $H_{\parallel}(T)$  и  $H_{\perp}(T)$ , используя формулы (1), (2), можно получить температурные зависимости как величины  $\delta H$ , так и  $4\pi M_{\text{eff}}$ . Результирующие кривые  $\delta H(T)$  показаны точками на нижних графиках рис. 2, а  $4\pi M_{\text{eff}}(T)$  – на рис. 3. Заметим, что температурное

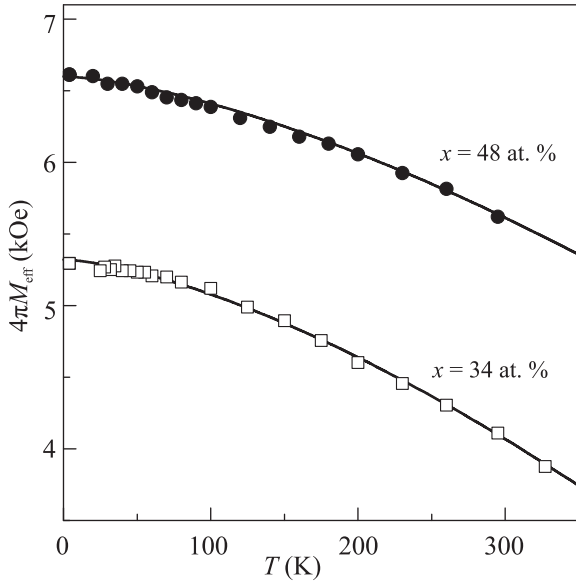


Рис. 3. Температурные зависимости  $4\pi M_{\text{эф}}(T)$  для пленок  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  с  $x \approx 48$  и 34 ат. %. Точки – эксперимент, линии – закон  $\frac{3}{2}$  Блоха

поведение  $4\pi M_{\text{эф}}(T)$  описывается обычным законом  $\frac{3}{2}$  Блоха (линии на рис. 3):

$$M(T) = M_0 - \alpha T^{3/2}. \quad (3)$$

Поправка к резонансному полю  $\delta H$  относительно медленно меняется с температурой в диапазоне  $T = 60\text{--}300$  К, однако ниже  $\approx 60$  К демонстрирует резкий рост. Именно этот рост обуславливает аномальное поведение  $H_{\text{res}}(T)$  в области низких  $T$  (рис. 2).

Помимо рассмотренной низкотемпературной особенности  $H_{\text{res}}(T)$ , зависимость ширины резонансного пика  $\Delta H(T)$  в области низких температур также демонстрирует необычное поведение. При охлаждении от комнатной температуры ширина линии сначала медленно монотонно увеличивается, что характерно для обычных механизмов уширения, связанных с неоднородностями. Однако ниже  $\approx 30\text{--}40$  К наблюдается сужение резонансного пика (рис. 1 и 4).

Обнаруженные особенности низкотемпературного поведения  $\delta H(T)$  и  $\Delta H(T)$  характерны для механизма медленной ионной релаксации на парамагнитных примесях [8, 9]. Суть эффекта заключается в модуляции величины расщепления энергетических уровней примесей в поле прецессирующего ФМ момента. Возникающее при этом перезаселение уровней приводит к поглощению энергии магнитных колебаний. Максимальный эффект достигается, когда период прецессии намагниченности оказывается сравним с характерным временем релаксации примесей.

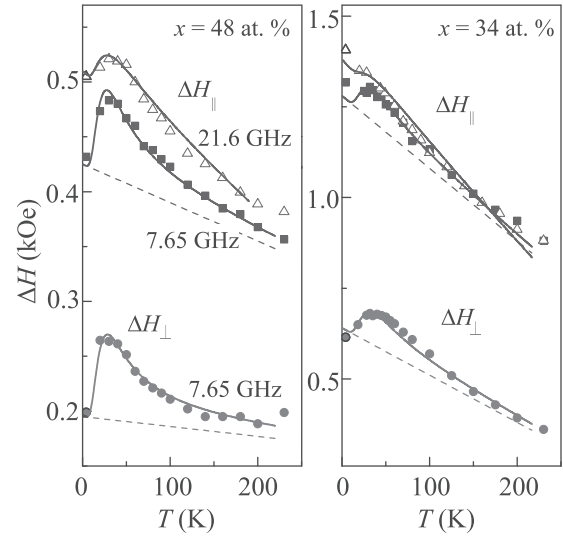


Рис. 4. (Цветной онлайн) Температурные зависимости ширины линии для пленок  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  с  $x \approx 48$  и 34 ат. % в нормальном и касательном поле на частотах  $f = 7.65$  и 21.6 ГГц. Точки – эксперимент, сплошные и штриховые линии – расчет с учетом вклада ионной релаксации и без него

Для теоретического описания экспериментальных зависимостей  $\delta H(T)$  и  $\Delta H(T)$  мы разделяем два вклада в ширину и сдвиг резонансного пика:

$$\delta H(T) = \delta H_0(T) + \delta H_{\text{SR}}(T), \quad (4)$$

$$\Delta H(T) = \Delta H_0(T) + \Delta H_{\text{SR}}(T). \quad (5)$$

Слагаемые  $\delta H_0(T)$  и  $\Delta H_0(T)$  связаны с неоднородностью пленок и относительно слабо (приблизительно линейно) зависят от температуры в области низких  $T$ . При этом неоднородный вклад может отличаться для различных ориентаций магнитного поля [6]. Напротив, вклад медленной релаксации (SR) на парамагнитных примесях считается изотропным, однако он приводит к существенно более резким (экспоненциальным) зависимостям  $\delta H_{\text{SR}}(T)$  и  $\Delta H_{\text{SR}}(T)$  в области низких температур [8, 10]:

$$\Delta H_{\text{SR}}(T) = F(T) \cdot \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2}, \quad (6)$$

$$\delta H_{\text{SR}}(T) = F(T) \cdot \frac{(\omega\tau)^2}{1 + (\omega\tau)^2}, \quad (7)$$

где  $\tau$  – время релаксации парамагнитных примесей. Температурная зависимость функции  $F(T)$  определяется выражением

$$F(T) = \frac{C}{T} \cdot \text{sech}^2 \frac{\Delta E}{2k_B T}, \quad (8)$$

где  $\Delta E$  – величина расщепления уровней энергии парамагнитного иона,  $C$  – коэффициент, пропорциональный количеству примесей, участвующих в процессе релаксации,  $k_B$  – константа Больцмана.

Важно, что время релаксации  $\tau$  также существенно зависит от температуры. Заметим, что из формул (6), (7) следует простое соотношение

$$\frac{\delta H_{\text{SR}}}{\Delta H_{\text{SR}}} = \omega\tau. \quad (9)$$

Это свойство, в принципе, позволяет вывести экспериментальную температурную зависимость времени релаксации, построив зависимость  $\delta H_{\text{SR}}/\Delta H_{\text{SR}}$  от  $T$  [9, 11]. В нашем случае, однако, наличие большого неоднородного вклада в ширину линии затрудняет аккуратное проведение такой процедуры, что не позволяет выполнить детальный анализ механизмов ионной релаксации. По этой причине здесь мы используем упрощенный подход, рассматривая пробную функцию активационного типа для температурной зависимости времени релаксации [8, 9]

$$\tau = \tau_0 \exp \frac{E_A}{k_B T}, \quad (10)$$

где  $\tau_0 \sim 10^{-11}$  с – постоянная времени, а  $E_A$  – энергия активации.

Экспериментальные зависимости  $\delta H(T)$  и  $\Delta H(T)$  хорошо согласуются с теоретическими кривыми, полученными в рамках предложенной модели (см. рис. 2 и 4). Параметры для вклада, связанного с медленной релаксацией на примесях, приведены в табл. 1. Результаты, полученные для различных образцов, отличаются не сильно, при этом порядок величин согласуется с типичными значениями, характерными для механизма ионной релаксации [8, 9]. Подчеркнем, что в реальной системе можно ожидать некоторого разброса характеристик парамагнитных ионов, участвующих в релаксации. По этой причине полученные значения параметров надо воспринимать лишь как “усредненные” или “эффективные”.

**Таблица 1.** Параметры модели ионной релаксации в пленках  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$

	$C$ (Э · К)	$\Delta E$ (К)	$E_A$ (К)
$x = 48$ ат. %	$0.6 \cdot 10^4$	20.0	40.0
$x = 34$ ат. %	$0.9 \cdot 10^4$	30.0	50.0

Отметим, что рассмотренный механизм уширения линии ФМР изначально был разработан для объяснения особенностей магнитной релаксации в железо-иттриевом гранате, допированном ионами

редкоземельных (РЗ) элементов [10]. Позднее свидетельства присутствия данного механизма были обнаружены в сплавах Гейслера  $(\text{Co}_2\text{Mn})_{1-x}\text{Ge}_x$  [12], пленках  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  с РЗ примесями [13], а также различных слоистых системах с обменным сдвигом петли гистерезиса [9, 14–16] (см. также обзор [17]). Однако возможность этого эффекта в гранулированных металл-диэлектрических наноконкомпозитах до сих пор не обсуждалась.

В нашем случае наблюдаемая релаксация может быть вызвана парамагнитными ионами Co и Fe, диспергированными в диэлектрической матрице  $\text{LiNbO}_3$ , и связанными обменным взаимодействием с ФМ гранулами  $\text{CoFeB}$ . Статическая магнитометрия исследуемых пленок свидетельствует о наличии таких ионов, проявляющих высокую магнитную восприимчивость ниже  $T \approx 40$  К [2]. Заметим, что этот факт согласуется с данными ФМР, демонстрирующими пик на температурной зависимости ширины линии в окрестности  $T \approx 40$  К.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты 18-07-00772, 18-07-00756, 19-07-00471), а также в рамках Программы фундаментальных исследований Президиума РАН “Актуальные проблемы физики низких температур”. Синтез НК пленок и их структурная характеристика выполнены при поддержке Российского научного фонда (проект # 16-19-10233).

- O. G. Udalov and I. S. Beloborodov, *AIP Advances* **8**, 055810 (2018).
- V. V. Rylkov, S. N. Nikolaev, V. A. Demin et al. (Collaboration), *ЖЭТФ* **126**, 353 (2018).
- K. Nikiruy, A. Emelyanov, V. Rylkov, A. Sitnikov, and V. Demin, *Tech. Phys. Lett.* **45**, 386 (2019).
- A. V. Emelyanov, K. E. Nikiruy, A. V. Serenko, A. V. Sitnikov, M. Y. Presnyakov, R. B. Rybka, A. G. Sboev, V. V. Rylkov, P. K. Kashkarov, M. V. Kovalchuk, and V. A. Demin, *Nanotechnology* **31**, 045201 (2019).
- C. R. Sullivan, *Integrating magnetics for on-chip power: Challenges and opportunities*, in *2009 IEEE Custom Integrated Circuits Conference*, IEEE, Rome (2009), p. 291.
- A. Drovoskov, N. Kreines, A. Barkalova, S. Nikolaev, V. Rylkov, and A. Sitnikov, *J. Magn. Magn. Mater.* **495**, 165875 (2020).
- K. B. Efetov and A. Tschersich, *Phys. Rev. B* **67**, 174205 (2003).
- A. Г. Гуревич, *Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках*, Наука, М. (1973).

9. J. Dubowik, F. Stobiecki, I. Gościanańska, Y.P. Lee, A. Paetzold, and K. Röhl, *Eur. Phys. J. B* **45**, 283 (2005).
10. J. H. van Vleck and R. Orbach, *Phys. Rev. Lett.* **11**, 65 (1963).
11. B. H. Clarke, K. Tweedale, and R. W. Teale, *Phys. Rev.* **139**, A1933 (1965).
12. H. T. Nembach, T. J. Silva, J. M. Shaw, M. L. Schneider, M. J. Carey, S. Maat, and J. R. Childress, *Phys. Rev. B* **84**, 054424 (2011).
13. G. Woltersdorf, M. Kiessling, G. Meyer, J.-U. Thiele, and C. H. Back, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 257602 (2009).
14. R. D. McMichael, C. G. Lee, M. D. Stiles, F. G. Serpa, P. J. Chen, and W. F. Egelhoff, *J. Appl. Phys.* **87**, 6406 (2000).
15. P. Lubitz, M. Rubinstein, J. J. Krebs, and S.-F. Cheng, *J. Appl. Phys.* **89**, 6901 (2001).
16. M. Gloanec, S. Rioual, B. Lescop, R. Zuberek, R. Szymczak, P. Aleshkevych, and B. Rouvellou, *Phys. Rev. B* **82**, 144433 (2010).
17. C. K. A. Mewes and T. Mewes, *Relaxation in Magnetic Materials for Spintronics*, in *Handbook of Nanomagnetism: Applications and Tools*, ed. by R. A. Lukaszew, Pan Stanford Publishing, Boca Raton (2015).