

文章编号: 1004 - 0609(2005)05 - 0787 - 06

磁性纳米线反磁化机制的微磁学模拟^①

张腊梅¹, 郭光华^{1, 2}, 刘正方¹

(1. 中南大学 物理科学与技术学院, 长沙 410083;

2. 中南大学 粉末冶金国家重点实验室, 长沙 410083)

摘要: 通过微磁学模拟手段对长径比均为 10 的不同直径纳米线的反磁化机制进行了系统研究, 发现磁反转模式强烈地依赖于纳米线的直径。直径很小时, 反转模式为一致反转; 随着直径增大, 反转模式过渡为两种不同类型磁化核(一致截面的磁化核或涡旋截面的磁化核)的形成与传播; 对于更大直径的纳米线, 纳米线中出现多畴结构, 反转过程通过多畴涡旋中心的移动来实现, 涡旋中心的移动满足右手定则; 得到了各种反磁化机制过渡的临界尺寸。计算了不同直径纳米线的矫顽力, 并与实验数据进行了比较, 从反磁化机制的角度解释了矫顽力随直径的变化关系。

关键词: 纳米线; 微磁学; 反磁化机制

中图分类号: O 488

文献标识码: A

Micromagnetic simulation of magnetization reversal mechanism in magnetic nanowires

ZHANG La mei¹, GUO Guang-hua^{1, 2}, LIU Zheng-fang¹

(1. School of Physics Science and Technology, Central South University, Changsha 410083, China;

2. State Key Laboratory of Powder Metallurgy, Central South University, Changsha 410083, China)

Abstract: The magnetization reversal mechanism of magnetic nanowires with different diameters but the same aspect ratio 10 were investigated by micromagnetic simulation. The results show that the reversal mechanism significantly depends on the nanowire diameter. For the smallest wire, the reversal model is coherent rotation. With the increase of diameter, magnetization reversal takes place via different nucleation (the transverse domain wall or the vortex domain wall) and subsequent propagation. For the larger nanowire, multidomain will form within the wire, the magnetization reversal is determined by the motion of vortices which conforms to the right hand rule. The critical diameters of different reversal mechanism are obtained. The coercivities of nanowires with different diameters are calculated and compared with experimental data, the change of coercivity with diameter is interpreted in terms of magnetization reversal mechanism.

Key words: nanowire; micromagnetics; magnetization reversal mechanism

磁性纳米线阵列由于可作为高密度垂直磁记录介质而受到人们高度重视, 人们主要借助多孔模板

通过电化学沉积的方法制备纳米线阵列, 并通过各种磁测量手段研究了它们的磁特性^[1, 2]。从微磁学

① 基金项目: 湖南省自然科学基金资助项目(04JJ3078)

收稿日期: 2004 - 09 - 21; 修订日期: 2005 - 01 - 26

作者简介: 张腊梅(1980 -), 女, 硕士研究生。

通讯作者: 郭光华, 教授, 博士; 电话: 0731-8836443; E-mail: guogh@mail.csu.edu.cn

角度而言,主要有两个方面的问题需要研究,一是纳米线阵列中纳米线之间的静磁相互作用,另一个是纳米线在外场作用下的反磁化机制。后者是本文所要讨论的内容。关于纳米线的反磁化机制,早在 1958 年, Aharoni 和 Shtrikman 就从理论上研究了无限长圆柱体的反磁化过程,得出两种主要的反转机制:一致反转和涡旋式反转。当纳米线直径 $D_p < \sqrt{\pi\lambda}$ (λ 指的是畴壁宽度) 时,反转模式为一致反转;当 $D_p > \sqrt{\pi\lambda}$ 时,反转模式为涡旋式反转,这两种反转都是所有磁化矢量的同时反转^[3, 4]。目前实验上也对纳米线阵列的反转机制进行了研究,但结论并不一致, Han 等^[5]认为存在一致反转和涡旋式反转是正确的。Paulus 等^[6]认为,当直径小于临界直径时,存在成核机制;当直径大于临界直径时,服从涡旋式反转。Hertel 和 Kirschner^[7, 8]通过微磁学模拟的手段研究了软磁纳米线的反转,认为存在截面一致的畴壁运动模式和涡旋畴壁运动模式两种重要的成核机制。而 Ferré 等^[9]的模拟认为磁化核的运动形式有所不同,反转过程是涡旋中心的不断产生和湮灭。为了更好的了解纳米线的各种反转机制,理解各种理论之间的区别与联系以及它们的适用范围,本文作者利用微磁学模拟的手段系统地研究了不同直径纳米线的反磁化机制,并与理论和实验相比较,对反磁化机制与直径的依赖关系以及各种机制之间的过渡做了更深入的探讨。

1 理论模型

微磁学是一个连续介质近似模型,除居里温度附近外,铁磁材料的饱和磁化强度 M_s 的绝对值是一个常量,不随外场和在磁体中位置的变化而改变。利用总自由能最小原理来确定磁体平衡状态下的磁矩分布。忽略磁弹性能和表面各向异性性能,系统的总自由能可分成如下几部分:

$$E_{tot} = E_{ex} + E_{an} + E_d + E_{Zee} \quad (1)$$

式中 E_{ex} 为交换能; E_{an} 为磁晶各向异性性能; E_d 为退磁能; E_{Zee} 为塞曼能。

磁矩从一个稳定状态到另一个稳定状态的变化过程遵循 Gilbert 动态方程:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -|\gamma| \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff} + \frac{\alpha}{M_s} \left[\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right] \quad (2)$$

式中 \mathbf{M} 是磁化强度矢量; γ 是旋磁比; α 是阻尼系数; 有效场 \mathbf{H}_{eff} 定义为自由能的变分, $\mathbf{H}_{eff} =$

$-\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_{tot}}{\partial \mathbf{M}}$, 它提供作用在磁化强度矢量上的实际力矩。

模拟基于有限差分的思想,把纳米线进行适当网格划分,假定每个网格内磁矩分布是均匀的,给定一初始的磁矩分布,计算每个网格内的有效场并求解 Gilbert 方程,得到磁化强度矢量的动力学变化过程,从而获得磁体的微磁结构分布^[10]。实际的纳米线是接近于圆柱形的,为了便于网格划分,本模拟是基于形状完全对称的长条,根据资料显示采用条形和采用圆柱体产生的误差不会超过 5%^[11]。本文作者对相应尺寸的柱状纳米线进行了模拟检验,发现差别非常小,这说明模拟结果是有意义的。材料参数取 Ni 的值:饱和磁矩 $|M_s| = 4.9 \times 10^5 \text{ A/m}$; 交换作用系数 $A = 9.0 \times 10^{-12} \text{ J/m}$ 。根据理论和模拟都能看到 Ni 纳米线的磁晶各向异性性能相对于形状各向异性性能(来源于退磁能)来说可以忽略^[12],所以取磁晶各向异性常数 $K = 0$,这也便于与无限长圆柱体理论模型相比较,并使模拟结果更具代表性。阻尼系数 α 取为默认值 0.5。对于直径小于 60 nm 的纳米线,当长径比达到 10 时,其形状各向异性性能和矫顽力都接近最大值^[13],对于大直径纳米线则需要更大的长径比才能达到最大值,但由于受到计算机内存的限制,模拟时纳米线长径比均取为 10。

2 结果与讨论

2.1 不同直径纳米线反磁化机制的模拟

在对 Ni 纳米线的反磁化过程进行微磁学模拟时,首先沿纳米线长轴方向加足够大的场,使纳米线沿该方向完全饱和磁化,然后逐渐把外场减小到相反方向,当外场沿相反方向达到反转场时,磁矩将发生反转,图 1 所示为直径为 5~60 nm 的不同直径纳米线反转过程中某时刻的磁矩分布。

从图 1(a) 可看出,直径为 5 nm 的纳米线的反磁化过程为一致反转,即反转过程中整个纳米线的磁化状态始终保持一致。目前实验上证实了磁性纳米线一致反转的存在^[14],尽管也有些研究认为不存在一致反转^[6],这是由于纳米线直径不够小,纳米线不够均匀以及纳米线间的静磁相互作用所致。当纳米线直径增大到 10 nm 时,反转模式变为非标准的一致反转(如图 1(b) 所示),即纳米线左右两部分的反转不对称,左端的反转超前于右端的反转。在反转过程中,整个纳米线的磁化状态始终保

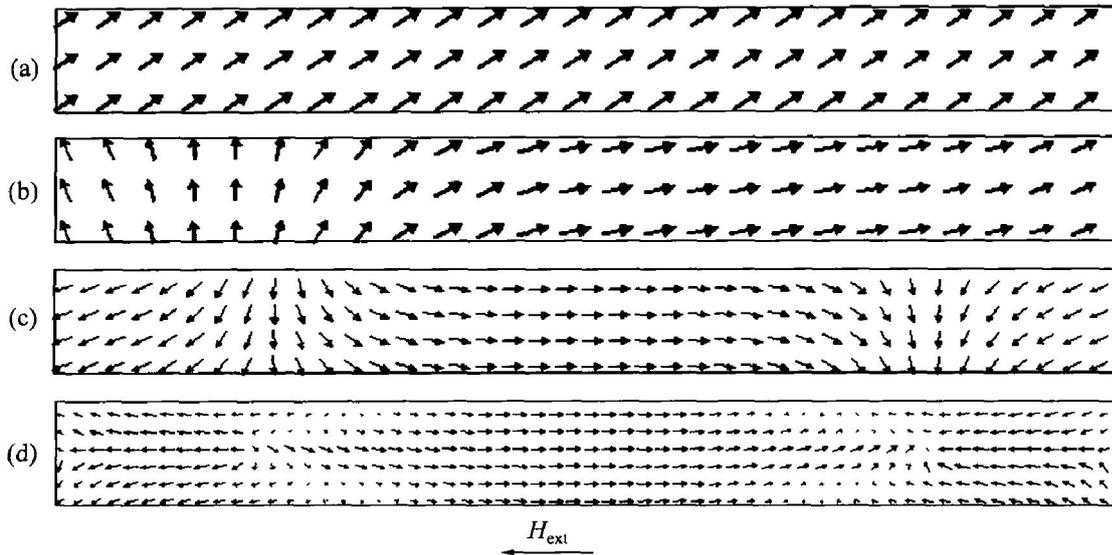


图 1 不同直径 Ni 纳米线在磁反转过程中某一时刻的微磁结构分布

Fig. 1 Micromagnetization distribution of Ni nanowires with different diameters at sometime during reversal processes

(H_{ext} is the external field applied along the arrow head)

(a) —5 nm; (b) —10 nm; (c) —20 nm; (d) —60 nm

持连续, 且任一截面状态均为一致分布, 即磁化状态仅与长轴上的位置有关, 称它为准一致反转。

当纳米线直径继续增加到 20 nm 时, 其反转模式转变为反磁化核的形成与传播, 即反磁化核首先在纳米线两端形成, 然后带动邻近的磁化强度矢量开始反转, 形成反磁化核畴壁沿纳米线长轴逐渐向中间移动。图 2 所示为不同直径纳米线在反转过程中某一时刻反磁化核截面的微磁结构分布。对于直径为 20 nm 的纳米线, 由于反磁化核畴壁中磁化强度矢量的方向与外场方向垂直, 产生沿纳米线长轴方向的转矩, 所以畴壁遵循典型的螺旋运动, 使畴壁中同一截面处磁化强度矢量的方向在保持一致的同时不断旋转发生周期性改变(如图 2(a)所示), 这种反转称为一致截面畴壁反磁化核的运动模式, 简称一致截面畴壁模式, 是旋转和畴壁运动的结合。目前许多研究从实验和理论上证明了有限长的纳米线存在成核机制, 即在纳米线两端或缺陷处形成反磁化核, 然后反磁化核沿纳米线传播实现反转^[6-9]。

当纳米线直径增大为 60 nm 时其反磁化机制仍然为反磁化核的形成与传播(如图 1(d)所示), 但反磁化核的结构与直径 20 nm 时不同: 直径为 20 nm 时反磁化核截面的磁化状态呈一致分布, 而直径 60 nm 时反磁化核截面为完全的涡旋结构, 且其截面磁化状态在传播过程中保持不变(如图 2(b)所示), 这种反转机制称为涡旋畴壁反磁化核的运动模式,

简称涡旋畴壁模式, 是涡旋式反转和成核机制的结合。图 3 给出了两种反转过程中平均磁化强度矢量的变化情况: 直径 20 nm 时, 由于磁化核的截面为一致分布, 且方向不断变化, 所以 M_y 和 M_z 呈振荡行为; 直径 60 nm 时, 由于磁化核截面为涡旋状态, 各个方向上的磁矩相互抵消, 所以 M_y 和 M_z 始终为零, 它们随时间的变化曲线重合, 这很好地体现了一致截面畴壁模式和涡旋畴壁模式的区别。本研究的模拟结果与文献[8]的结论相一致。

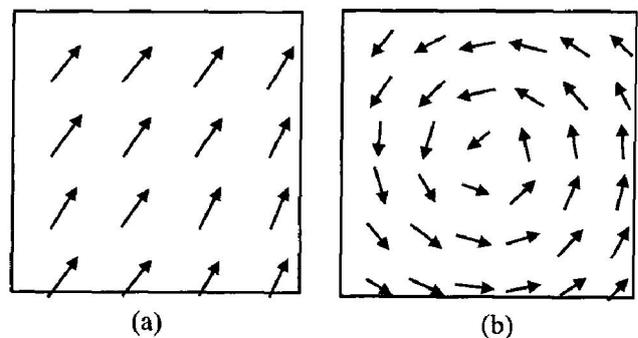


图 2 不同直径纳米线反转过程中

某一时刻反磁化核截面的微磁结构分布

Fig. 2 Micromagnetization distribution of cross-section for nucleation at sometime during reversal in nanowire with different diameters

(a) —20 nm; (b) —60 nm

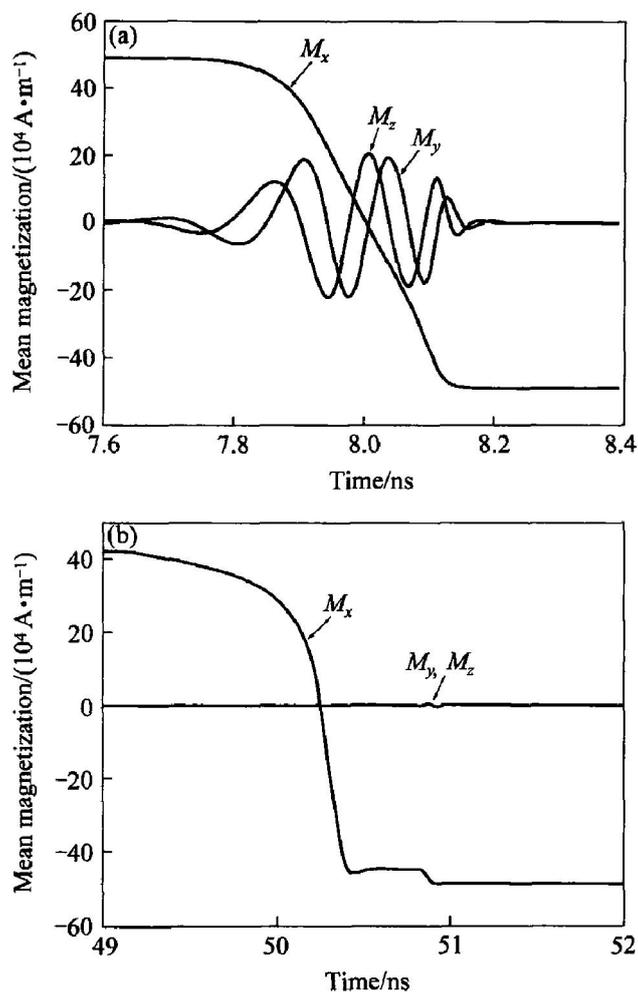


图 3 不同直径纳米线反转过程中平均磁化强度矢量各分量随时间的变化曲线

Fig. 3 Change curves of spatially mean magnetization components with time during reversal for nanowire with different diameters

(M_x represent the component parallel to wire axis, M_y and M_z represent the component perpendicular to wire axis)
(a) —20 nm; (b) —60 nm

根据无限长圆柱体反磁化机制的理论模型, Ni 纳米线发生一致反转和涡旋式反转的临界直径为 39 nm。当直径小于 39 nm 时, 反转模式为一致反转; 当直径大于 39 nm 时, 反转模式为涡旋式反转, 这与本文模拟给出的一致反转的临界直径(7 nm) 相差甚远。无限长纳米线的反磁化机制理论对于有限长的纳米线并不完全适用^[9], 因为无限长纳米线不存在端点, 而有限长纳米线的两端具有较强的退磁场, 因此两端易形成反磁化核。当纳米线的直径达到一定值(> 7 nm) 时, 两端形成反磁化核的成核场要小于发生一致反转或涡旋式反转所需要的反转场, 从而使得反磁化机制由一致反转或涡旋式反转变为磁化核的形成与传播。本文作者做了如下

模拟: 使纳米线两端的磁矩固定, 从而消除反磁化核在两端形成的可能, 结果发现两端磁矩钉扎后, 纳米线的反转过程明显变化, 直径为 20 nm 时反转模式为一致反转, 而直径为 60 nm 时的反转模式接近于涡旋式反转。

文献[5]认为, 当 Ni 纳米线直径小于理论临界直径时, 其反磁化机制为一致反转模式。根据矫顽力随外场与纳米线长轴之间夹角的变化服从一致反转的规律: 当夹角为 0° 时, 矫顽力最大; 当夹角为 90° 时, 矫顽力最小。但这并不足以说明反转模式为一致反转, 因为根据本文作者的微磁学模拟结果, 一致截面畴壁模式反磁化过程的矫顽力与角度的关系与一致反转过过程的结果非常相似, 也是随着夹角的增大矫顽力逐渐减小(关于纳米线矫顽力与角度的关系的详细研究结果将在另一篇论文中报道)。

研究表明, 纳米线直径由 20 nm 增加到 60 nm 时, 由一致截面畴壁模式过渡到涡旋畴壁模式的临界直径为 40 nm 左右, 这与无限长纳米线反磁化理论模型中由一致反转过渡到涡旋式反转的临界直径基本一致。在无限长纳米线涡旋式反转模式中截面的微磁结构与有限长纳米线涡旋畴壁反转模式中反磁化核的截面微磁结构一样, 无限长纳米线一致反转模式与有限长纳米线一致截面畴壁反转模式的反磁化核也有着相同的截面微磁结构, 可见这一临界直径对应着纳米线反磁化过程中截面微磁结构的变化。在无限长纳米线的两种反磁化模式中, 整个纳米线内部磁矩同时发生变化, 而有限长纳米线的两种反转模式对应着反磁化核首先在两端形成, 然后再向中间传播。有限长和无限长纳米线反磁化机制的差别在于有限长纳米线的两端存在较强的退磁场, 易形成反磁化核。

目前还没有关于大直径纳米线反转机制的模拟研究, 实验上仅提出当直径远大于临界直径时, 反转可能会出现多畴结构^[5]。本文在这方面进行了探讨。图 4 所示为直径为 80 nm 的 Ni 纳米线在磁反转过程中不同时刻的微磁结构分布。由图 4 可见, 纳米线直径为 80 nm 时, 反转机制与 60 nm 时的完全不同, 反转过程不再是磁化核的形成与传播, 而是多畴涡旋中心的形成与移动。首先是纳米线两端的磁化矢量开始反转, 然后在两端分别形成一个涡旋, 逐渐从上下两侧向轴心移动, 在移动的过程中, 涡旋的内侧又分别形成新的涡旋, 这两个涡旋也分别从两侧向轴心移动, 在新涡旋移动的过程中, 其内侧又形成两个涡旋, 这样, 在纳米线中可观察到 6 个涡旋中心, 随着反转的继续进行, 这 6

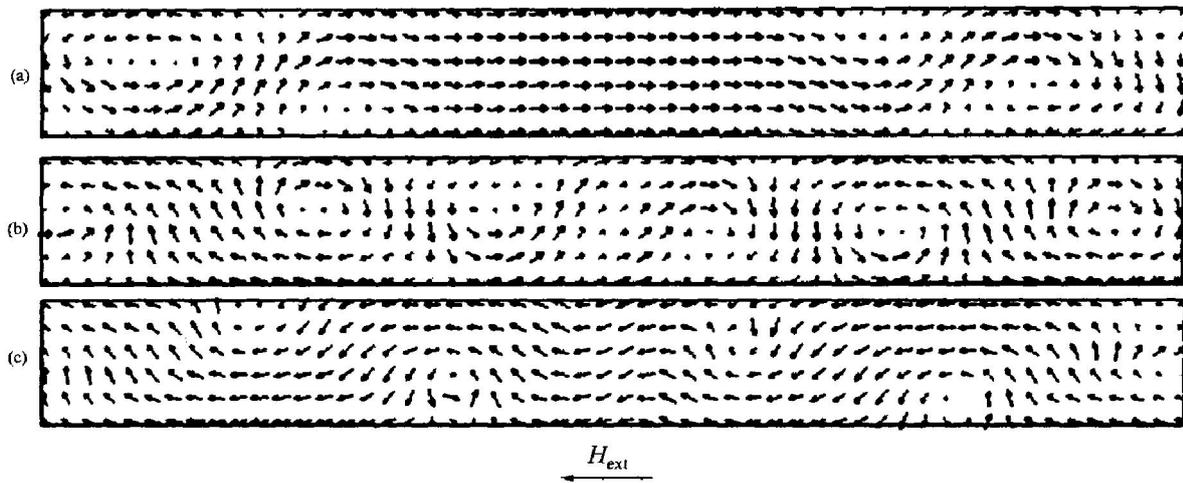


图 4 直径 80 nm 的 Ni 纳米线在磁反转过程中不同时刻的微磁结构分布

Fig. 4 Micromagnetization distribution of Ni nanowire with diameter of 80 nm at different times during reversal process (H_{ext} is the external field which is applied along the arrow head)

(a)–(c) —Taken at increasing time

个涡旋又依次消失, 消失的过程仍然是涡旋中心的移动。最先消失的是纳米线两端的涡旋, 然后其它的涡旋均向纳米线上下两侧移动, 直至消失。

反转过程中, 所有涡旋中心的移动都服从右手定则: 伸开右手, 让涡旋的方向(对于沿逆/顺时针方向旋转的涡旋, 涡旋方向为垂直纸面指向外/内)穿过手心, 四指指向外场方向, 大拇指所指方向即为涡旋移动的方向。也可以用畴壁的移动导致磁畴大小的变化来解释反转过程, 在反转过程中, 磁化方向与外场方向相同的磁畴逐渐增大, 与外场方向相反的磁畴逐渐减小。磁畴的增大和减小引起了涡旋中心的移动, 最终使涡旋中心移出纳米线, 实现了反转过程。多畴涡旋中心的移动服从右手定则, 这种反转模式在现有理论中尚未提到。

对小直径的纳米线, 增大长径比并不会改变其反转模式, 但对发生多畴涡旋反转的大直径的纳米线, 当长径比增大时, 反转机制将变为磁化核的形成与传播。这说明反转机制也依赖于长径比。

2.2 矫顽力随直径的变化规律

通过对 Ni 纳米线沿长轴方向磁滞回线的微磁学模拟, 可以得到外场平行于长轴时纳米线矫顽力随直径的变化关系, 结果如图 5 所示。由图 5 可看出, 当纳米线直径小于 60 nm 时, 矫顽力随着直径的增加迅速减小; 直径大于 60 nm 时, 减小的速度越来越慢, 其整体的变化趋势和实验结果基本一致^[15, 16]。矫顽力大小随直径变化是由纳米线的反磁化机制所决定的, 不同反转机制决定的矫顽力大

小不同: 一致反转所决定的矫顽力大, 多畴反转决定的矫顽力小, 由反磁化核决定的矫顽力介于这两者之间。但模拟结果与实验数据之间存在一定的差别, 尤其是在小直径范围内。需要指出的是, 本研究所模拟的是理想的单根纳米线, 而实验上制备和测量的是纳米线阵列, 且纳米线并不完全垂直于膜板, 一般存在 10° 左右的偏差^[9], 纳米线间的静磁相互作用对矫顽力有很大的影响, 且实验制备的纳米线阵列不可避免的存在各种缺陷。以上这些因素都会使矫顽力的实验值显著降低。缺陷及纳米线间的静磁相互作用对反磁化机制和矫顽力大小的影响值得深入、详细地研究。

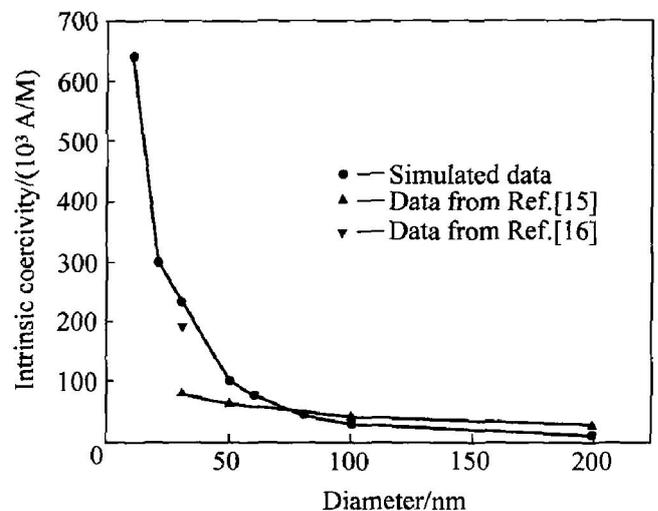


图 5 外场平行于长轴时矫顽力随直径的变化曲线

Fig. 5 Change curves of intrinsic coercivity with diameter for applied field parallel to nanowires

3 结论

1) 随着纳米线直径的增大, 反磁化机制越来越复杂, 由简单的一致反转过渡为准一致反转, 再过渡为磁化核的形成与传播。

2) 从截面观察磁化核的磁化状态, 发现随着纳米线直径的增加磁化核的状态由一致分布过渡为涡旋状态, 其过渡的临界直径与无限长纳米线模型中一致反转过渡为涡旋式反转的临界直径基本一致。

3) 直径大于 70 nm, 长径比为 10 的纳米线反转过程通过多畴涡旋中心的移动实现, 涡旋中心的移动服从右手定则。

4) 通过模拟得到了矫顽力随直径的变化关系, 从反磁化机制的角度解释了矫顽力随直径增大而减小的原因。

REFERENCES

[1] Strijkers G J, Dalderop J H J, Broeksteeg M A A, et al. Structure and magnetization of arrays of electrodeposited Co wires in anodic alumina[J]. *J Appl Phys*, 1999, 86(9): 5141 - 5145.

[2] Liu Q F, Gao C X, Xiao J J, et al. Size effects on magnetic properties in Fe_{0.68}Ni_{0.32} alloy nanowire arrays[J]. *J Magn Magn Mater*, 2003, 260: 151 - 155.

[3] Frei E H, Shtrikman S, Treves D. Critical size and nucleation field of ideal ferromagnetic particles [J]. *Phys Rev*, 1957, 106(3) : 446 - 455.

[4] Aharoni A, Shtrikman S. Magnetization curve of the infinite cylinder[J]. *Phys Rev*, 1958, 109(5): 1522 - 1528.

[5] Han G C, Zong B Y, Luo P, et al. Angular dependence of the coercivity and remanence of ferromagnetic nanowires arrays [J]. *J Appl Phys*, 2003, 93(11): 9202 - 9207.

[6] Paulus P M, Luis F, Kröll M. Low-temperature study of the magnetization reversal and magnetic anisotropy

of Fe, Ni, and Co nanowires[J]. *J Magn Magn Mater*, 2001, 224: 180 - 196.

[7] Hertel R. Computational micromagnetism of magnetization processes in nickel nanowires[J]. *J Magn Magn Mater*, 2002, 249: 251 - 256.

[8] Hertel R, Kirschner J. Magnetization reversal dynamics in nickel nanowires[J]. *Physica B*, 2004, 343: 206 - 210.

[9] Ferré R, Ounadjela K, George J M, et al. Magnetization processes in nickel and cobalt electrodeposited nanowires[J]. *Phys Rev B*, 1997, 56(21): 14066 - 14075.

[10] Mike D, Don P. OOMMF User's Guide, Release 1.2a, [EB/OL]. <http://math.nist.gov/oommf/>, October 30, 2002.

[11] Leon A, Zhu J G, James A B, et al. Micromagnetic simulation of a flux guide for a read head with sub-100 nm resolution[J]. *J Appl Phys*, 2000, 87(9): 5538 - 5540.

[12] Skomski R, Zeng H, Sellmyer D J. Incoherent magnetization reversal in nanowires [J]. *J Magn Magn Mater*, 2002, 249: 175 - 180.

[13] 肖君军, 孙超, 薛德胜, 等. 铁磁纳米线磁行为的微磁学模拟与研究[J]. *物理学报*, 2001, 50(8): 1605 - 1609.

XIAO Jurjun, SUN Chao, XUN De-sheng, et al. Study on magnetic properties of Fe nanowires by micromagnetic simulation[J]. *Acta Phys Sin*, 2001, 50(8): 1605 - 1609.

[14] Zhang X Y, Wen G H, Chan Y F, et al. Fabrication and magnetic properties of ultrathin Fe nanowire arrays[J]. *Appl Phys Lett*, 2003, 83(16): 3341 - 3343.

[15] Ounadjela K, Ferré R, Louail L. Magnetization reversal in cobalt and nickel electrodeposited nanowires [J]. *J Appl Phys*, 1997, 81(8): 5455 - 5457.

[16] Piraux L, Dubois S, Ferain E, et al. Anisotropic transport and magnetic properties of arrays of sub-micron wires[J]. *J Magn Magn Mater*, 1997, 165: 352 - 355.

(编辑 李艳红)