

Структура и свойства напыленных пленок железо-иттриевого граната

© В.Ф. Шкарь, Е.И. Николаев, В.Н. Саяпин, А.И. Линник, В.П. Денисенков*, А.М. Гришин*, С.И. Харцев*

Донецкий физико-технический институт Национальной академии наук Украины,
83114 Донецк, Украина

* Department of Condensed Matter Physics, Royal Institute of Technology,
S-164 40 Stockholm-Kista, Sweden

E-mail: shkar@donapex.net.ua
nikol@donapex.net.ua

(Поступила в Редакцию 25 июня 2004 г.)

Методами ферромагнитного резонанса (ФМР) и вибромагнитометра проведено исследование пленок железо-иттриевого граната, полученных жидкофазной эпитаксией и лазерным напылением на (111)-ориентированной подложке галлий-гадолиниевого граната, с целью определения природы структурных особенностей напыленных пленок. Показано, что по признаку экспериментально наблюдаемой кубической магнитной анизотропии напыленные пленки следует считать монокристаллическими. В то же время отсутствие доменной ветви ФМР в ненасыщенной пленке и вид кривой намагничивания свидетельствуют о том, что в размагниченном состоянии напыленная пленка не содержит доменной структуры, как это должно иметь место в монокристаллической пленке. В соответствии с предложенной моделью напыленная пленка состоит из плотно упакованных монокристаллических фрагментов с одинаковой для всех пространственной ориентацией кристаллической решетки, которые разделены границами, характеризующимися некоторым атомно-неупорядоченным состоянием. В результате такая пленка не только локально, но и макроскопически анизотропна подобно „сплошному“ монокристаллу. Такая пленка может разбиваться на домены только в пределах границ фрагмента (подобно зернистому магнитному поликристаллу), однако этого не происходит из-за того, что линейный размер субмикроскопического фрагмента меньше равновесной ширины домена.

1. Введение

Феррит-гранатовые пленки типа железо-иттриевого граната (ЖИГ), получаемые методом жидкофазной эпитаксии (ЖФЭ), на протяжении многих лет являются объектом интенсивного исследования. Представляют интерес также феррит-гранатовые пленки, полученные методом лазерного (ЛН) и электронно-лучевого (ЭЛН) напыления [1,2]. В частности, методом ЛН удалось получить пленки железо-висмутового граната $\text{Vi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ с рекордно высоким эффектом Фарадея, что не удавалось сделать методом ЖФЭ. Исследование спектров ФМР позволило наблюдать проявление в них, по-видимому, магнетизма висмута [3]. При исследовании ЛН-пленок $\text{Vi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ была установлена интересная особенность: в этих пленках при наблюдении в поляризационном оптическом микроскопе не обнаруживается доменной структуры, хотя толщина пленок ($\sim 1 \mu\text{m}$) более чем достаточна для проявления высокого магнитооптического контраста. При этом рентгеноструктурные исследования показывают, что по структуре пленки близки к монокристаллическим [4] и, следовательно, должны содержать доменную структуру. Аналогичная картина наблюдалась авторами и в пленках ЛН ЖИГ, в то время как в ЖФЭ-пленках ЖИГ доменная структура присутствует.

В предыдущих исследованиях ультратонких пленок ЖИГ, полученных методом ЖФЭ на (111)-ориентированной подложке галлий-гадолиниевого граната (ГГГ), было, в частности, показано, что определенную информацию о не видимой в поляризационном оптическом микроскопе доменной структуре таких пленок можно получить, исследуя спектры ферромагнитного

резонанса (ФМР) и изучая процесс перемагничивания пленок в квазистатическом магнитном поле [5].

В настоящей работе проведено исследование ЛН (ЭЛН)-пленок ЖИГ и ЖФЭ-пленок ЖИГ путем сравнения намагничивания и использования метода ФМР для определения природы структурных особенностей ЛН (ЭЛН)-пленок ЖИГ.

2. Экспериментальная часть

2.1. Исследуемые образцы и методика эксперимента. Объектом экспериментальных исследований были образцы двух типов: 1) монокристаллические пленки ЖИГ толщиной $\sim 1 \mu\text{m}$, выращенные на (111)-ориентированной подложке ГГГ методом жидкофазной эпитаксии из оксидного раствора-расплава [6], и 2) напыленные на тех же подложках с использованием методов ЛН и ЭЛН пленки ЖИГ толщиной $\sim 1 \mu\text{m}$. Для определения кривых намагничивания исследуемых образцов использовался метод вибрационного магнитометра. Для определения параметров ФМР применялась установка, работающая на отражение и позволяющая проводить исследование в диапазоне частот 1.0–10 GHz с модулирующей магнитного поля. В качестве измерительной ячейки (чувствительного элемента) использовался медный микрополосок шириной 0.1 и длиной 6 mm. Исследуемый образец диаметром 6 mm был приклеен к торцу латунной оси устройства вращения и плотно прижимался с помощью пружины к микрополоску. Ось вращения образца и поворотного устройства электромагнита имела взаимно перпендикулярную ориентацию,

что позволяло ориентировать внешнее магнитное поле вдоль необходимого для эксперимента направления.

Минимальное значение ширины линии ФМР на частоте 9.3 GHz для напыленных пленок было около 5 Oe. Для произвольно выбранных направлений внешнего поля относительно нормали к поверхности пленки возбуждались две или три близко расположенные линии ФМР. Когда внешнее магнитное поле направлялось под углом 31° к нормали пленки, в спектре наблюдалась только одна линия, которая имела при этом максимальную интенсивность. Под этим же углом в 31° поле направляли и при определении параметров кубической магнитной анизотропии, когда снимали азимутальную зависимость резонансного поля (образец при этом вращали вокруг нормали). Линия ФМР по-прежнему была единственной в спектре.

Ширина линии ФМР для ЖФЭ-пленок ЖИГ была около 0.5 Oe. Гиромагнитное отношение, намагниченность насыщения и кубическая анизотропия такие же, как и в напыленной пленке.

2.2. Экспериментальные результаты. Кривые намагничивания в плоскости пленки для ЖФЭ- и ЛН-пленок ЖИГ, снятые методом вибрационного магнитометра, приведены на рис. 1. Как следует из приведенных данных, поле насыщения H_s для ЛН-пленки (2) на порядок меньше, чем у ЖФЭ-пленки (1). Кроме того, на кривой 2 нет особенностей, подобных цепочке частных петель гистерезиса, характерных для кривой 1. Интересно сопоставить этот результат с данными работы [7], в которой методом ферромагнитометра исследован процесс перемагничивания ЖФЭ-пленок ЖИГ с одновременным наблюдением в поляризационный микроскоп доменной структуры, которая была видна благодаря достаточно высокому магнитооптическому контрасту при толщине пленки $7 \mu\text{m}$. Ориентация внешнего

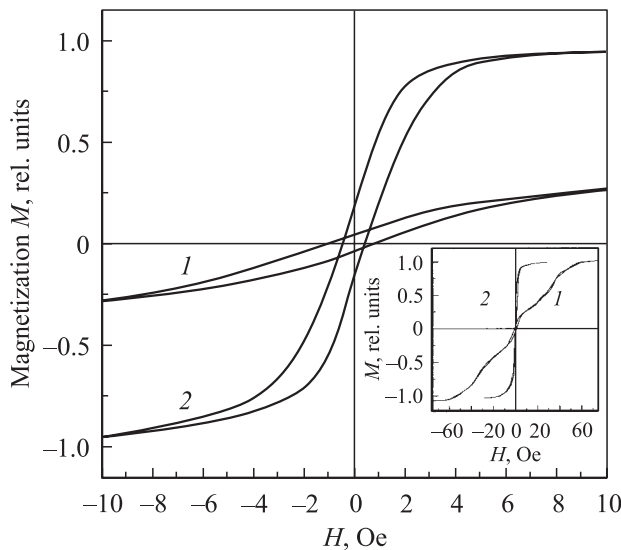


Рис. 1. Петли гистерезиса в планарном магнитном поле для пленок, полученных методом жидкофазной эпитаксии (1) и методом лазерного напыления (2). На врезке показан полный вид этих петель.

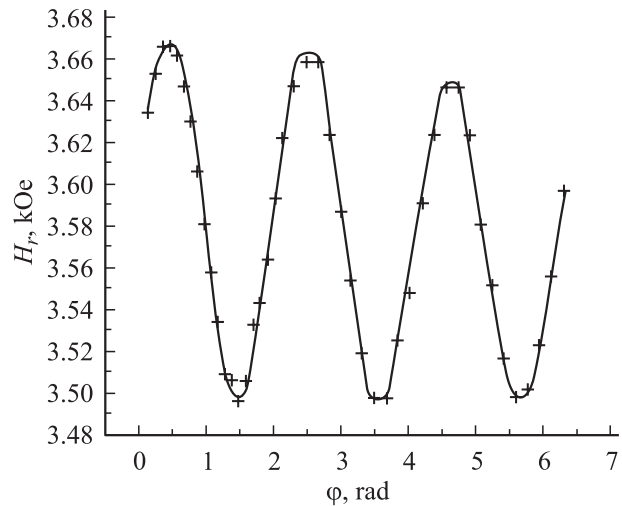


Рис. 2. Зависимость поля ФМР от азимутального угла при вращении в плоскости пленки ЖИГ, полученной методом лазерного напыления.

магнитного поля была в плоскости пленки, а насыщение достигалось в поле $H_s \sim 50$ Oe, что близко к результатам в нашем образце ЖФЭ-пленки ЖИГ. Совпадает и вид петель гистерезиса обоих образцов, что указывает на идентичность проходящих процессов намагничивания. Показано, что наличие указанных выше особенностей на кривой намагничивания пленки связано со скачкообразным смещением доменных границ по мере увеличения внешнего поля, что находит отражение также в скачках высокочастотной магнитной восприимчивости [7]. Опираясь на эти данные и вид кривых на рис. 1, можно сделать предположение, что пленка 2 не разбита на домены и что ее перемагничивание происходит только путем разворота векторов магнитного момента в направлении внешнего поля.

На рис. 2 представлена зависимость поля ФМР от азимутального угла при фиксированном значении полярного угла, равном 31° , на частоте 9.3 GHz для образца ЖИГ, полученного методом ЛН. Аналогичная зависимость резонансного поля имеет место и в ЖФЭ-пленках ЖИГ, а ранее была определена в пленке железо-висмутового граната $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, полученной методом ЛН [3]. Как видно из рис. 2, в исследуемом образце хорошо проявляются оси кубической магнитной анизотропии. Это свидетельствует в пользу того, что в обоих случаях (напыленные и ЖФЭ-пленки ЖИГ) мы имеем дело с магнитными монокристаллами.

На рис. 3 показана частотно-полевая зависимость (ЧПЗ) ФМР для ЖФЭ-пленки ЖИГ и пленки, полученной методом магнетронного напыления. Поле направлено перпендикулярно плоскости пленки. Из рисунка видно, что для первой пленки наблюдается ФМР как в области насыщения, так и в области существования доменной структуры (доменный ФМР). Вид этой зависимости хорошо описывает теория с учетом кубической магнитной анизотропии в монокристаллической пленке

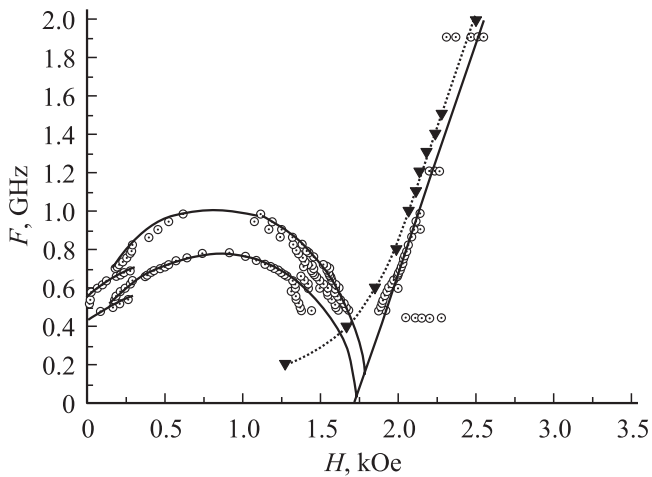


Рис. 3. Частотно-полевая зависимость ФМР для пленок ЖИГ, полученных методом жидкофазной эпитаксии (светлые точки) и методом магнетронного напыления (темные треугольники).

ЖИГ, содержащей доменную структуру [5]. Для второй пленки в ненасыщенном состоянии ФМР не наблюдается. С увеличением поля сигнал появляется только вблизи поля насыщения образца. В насыщенном состоянии ЧПЗ для обеих пленок практически совпадают. Вид ЧПЗ для этой пленки вблизи поля H_s напоминает теоретическую кривую [8] пленки, у которой отсутствует доменная структура и нет кубической анизотропии.

3. Обсуждение результатов

Таким образом, полученные экспериментальные результаты применительно к напыленным пленкам ЖИГ определенно противоречивы с точки зрения общепринятых представлений о структуре монокристаллических пленок ЖИГ. На то, что напыленные пленки являются монокристаллическими, указывают как результаты рентгеноструктурного анализа, так и факт наличия кристаллографической кубической анизотропии, обнаруживаемой методом ФМР в намагниченном до насыщения состоянии (рис. 2). Но в этом случае в размагниченном (ненасыщенном) состоянии такая пленка должна иметь доменную структуру и в ней должен возбуждаться доменный ФМР, как это имеет место в ЖФЭ-пленке ЖИГ. Однако, как отмечалось выше, в напыленных пленках доменный ФМР не наблюдается, а вид кривой намагничивания на рис. 1 с большой вероятностью свидетельствует об отсутствии доменной структуры (доменных границ).

Какой можно представить структуру напыленной пленки, которая бы соответствовала полученным экспериментальным результатам? На наш взгляд, в качестве модели можно принять монокристаллическую пленку, которая сеткой субмикроскопических „трещин“ разбита на фрагменты, линейный размер которых меньше равновесной ширины домена, вследствие чего не

происходит разбиения на доменную структуру. Иными словами, пленка не является сплошной, а состоит из плотно упакованных фрагментов, каждый из которых находится в насыщенном состоянии и характеризуется вектором магнитного момента \mathbf{M}_F . Во всех фрагментах такой пленки сохраняется одинаковая пространственная ориентация кристаллической решетки. Поэтому пленка анизотропна не только микроскопически (как, например, мелкодисперсная поликристаллическая система), но и макроскопически, как монокристалл. Это и показывает эксперимент по определению кубической магнитной анизотропии при измерении зависимости поля ФМР от азимутального угла при вращении пленки в насыщенном состоянии (рис. 2).

Такая структура могла сформироваться в результате островкового роста пленки в процессе напыления. Все островки в процессе роста на общей монокристаллической подложке испытывали ориентирующее влияние ее кристаллической решетки, т. е. воспроизводили одну и ту же пространственную ориентацию решетки, поэтому на стыках фрагментов пленки нет резких структурных разрывов, как это имеет место на межзеренных границах в поликристаллической системе. По этой причине по данным рентгеноструктурного анализа фрагментированная пленка не отличается от сплошной монокристаллической.

Тем не менее идеального срастания островков растущей пленки все же, по-видимому, не произошло, так что область стыковки фрагментов характеризуется некоторым атомно-неупорядоченным состоянием. Это сказалось на величине такого структурно чувствительного параметра, как ширина линии ФМР, которая в напыленной пленке на порядок больше, чем в ЖФЭ-пленке. Наличие атомно-неупорядоченных границ обусловило разрыв обменного взаимодействия между атомами соседних фрагментов и отсутствие координации во взаимном расположении (ориентации) магнитных моментов монокристаллических фрагментов. Вследствие этого магнитные моменты \mathbf{M}_F внутри фрагментов могли быть ориентированы в любом из шести направлений легкого намагничивания в плоскости (111). Дополнительный вклад во взаимную разориентацию векторов \mathbf{M}_F должно вносить дальнедействующее дипольное взаимодействие всей совокупности магнитных фрагментов пленки, стремящееся обеспечить минимум магнитостатической энергии.

Нам неизвестна теория ФМР для такого фрагментарного ненасыщенного состояния кристаллической магнитной пленки. По-видимому, совокупность разнородно ориентированных магнитных моментов, принадлежащих не связанным обменным взаимодействием фрагментам пленки, не может сформироваться как единое сфазированное спинволновое возбуждение. По этой причине в напыленной пленке ЖИГ не наблюдается доменный ФМР, однако наблюдается ФМР в насыщенной пленке, когда вся совокупность векторов \mathbf{M}_F однородно ориентирована по направлению внешнего магнитного поля (рис. 3).

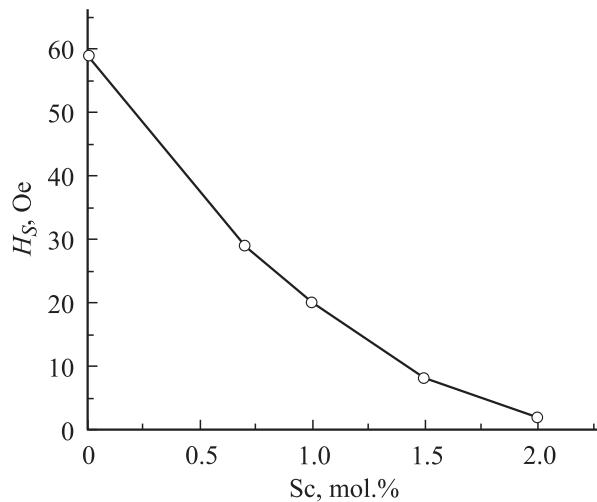


Рис. 4. Зависимость поля насыщения образца ЖИГ при намагничивании в плоскости пленки от степени замещения ионов железа ионами скандия.

В связи с изложенным выше предположением о структуре напыленной пленки следует вновь обратиться к рис. 1. Согласно общепринятым представлениям, перемещение доменных границ требует меньших затрат энергии, чем путем вращения вектора магнитного момента. В таком случае насыщение ЖФЭ-пленки должно достигаться в меньших полях, чем напыленной пленки, не содержащей, по нашему предположению, магнитных доменов. Однако данные эксперимента, представленные на рис. 1, свидетельствуют об обратном. Полагаем, что решающим фактором, определившим большую величину H_s ЖФЭ-пленки, явилось наличие растягивающих напряжений в этой пленке и обусловленной ими одноосной магнитной анизотропии в направлении нормали к поверхности пленки, имеющей ориентацию (111) (так называемой индуцированной напряжениями анизотропии). Преодоление энергии этой анизотропии при намагничивании пленки в ее плоскости должно приводить к увеличению H_s . Поскольку указанные напряжения возникают в результате различия в параметрах кристаллографических решеток пленки ЖИГ ($a_0 = 1.2376$ nm) и подложки ГГ ($a_0 = 1.2382$ nm), нивелирование этих различий должно привести к уменьшению поля насыщения пленки. С этой целью была выращена серия ЖФЭ-пленок ЖИГ с частичным замещением иона Fe^{3+} ионом Sc^{3+} , имеющим больший ионный радиус. Результаты измерения величины H_s для пленок этой серии представлены на рис. 4; из них следует, что вследствие снижения напряжений за счет введения скандия поле насыщения пленки ЖИГ удастся снизить до значений $H_s = 2$ Oe. Таким образом, можно считать, что низкая величина H_s напыленной пленки ЖИГ на рис. 1 свидетельствует о практически полном отсутствии в ней напряжений, релаксация которых стала возможной благодаря фрагментарной структуре напыленной

пленки с атомно-неупорядоченным состоянием границ фрагментов. Как показывают наблюдения авторов, точно так же резко уменьшаются напряжения в ЖФЭ-пленке ЖИГ после образования в ней сетки трещин, вызванных напряжениями несоответствия.

Чтобы предложенная модель не представлялась чисто умозрительной, сошлемся на результаты электронно-микроскопических исследований структуры ЛН-пленки $Bi_3Fe_5O_{12}$, полученной в работе [9]. На снимке поперечного сечения пленки толщиной ~ 1.3 μm различается „столбчатая“ структура субмикронных размеров в поперечнике столба, ориентированная вдоль нормали к поверхности пленки (т.е. в направлении роста пленки). Полагаем, что результаты [9] можно считать дополнительным аргументом в пользу фрагментарной модели напыленных пленок ЖИГ.

Таким образом, предложенная в данной работе фрагментарная модель позволяет непротиворечивым образом объяснить приведенные выше результаты экспериментальных исследований напыленных пленок ЖИГ, хотя не дает ясных представлений о том, как „устроена“ граница, прерывающая обменную связь между фрагментами магнитного монокристалла.

Список литературы

- [1] T. Okuda, N. Koshizuka, H. Kobayashi, N. Kobayashi. *J. Appl. Phys.* **67**, 4944 (1990).
- [2] Travendrarajah, M. Pardavi-Horvath, P.E. Wigen, M. Gomi. *IEEE Trans. Magn.* **25**, 4015 (1989).
- [3] В.Ф. Шкарь, В.П. Денисенков, А.М. Гришин, А.А. Ялалы, С.И. Харцев, Е.И. Николаев, В.Н. Саяпин. *ФТТ* **45**, 12, 2227 (2003).
- [4] N. Adachi, V.P. Denysenkov, S.I. Khartsev, A.M. Grishin. *J. Appl. Phys.* **88**, 5, 2734 (2000).
- [5] В.Ф. Шкарь, Е.И. Николаев, В.Н. Саяпин, В.Д. Пойманов. *ФТТ* **46**, 6, 1043 (2004).
- [6] Е.И. Николаев, И.А. Красин. *Кристаллография* **33**, 2, 478 (1988).
- [7] Б.А. Беляев, С.Н. Кулинич, В.В. Тюрнев. Препринт ИФ им. Киренского № 556Ф. Красноярск (1989).
- [8] Ферромагнитный резонанс / Под ред. С.В. Вонсовского. Физ.-мат. лит., М. (1961).
- [9] N. Adachi, T. Okuda, V.P. Denysenko, S.I. Khartsev, A.M. Grishin. *The 8th Intern. Conf. on Ferrites (ICF-8)*. Kyoto, Japan (2000).