# 05

# Поверхностная мода в спектре спин-волнового резонанса манганитовой пленки La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub> при упругой деформации

© В.А. Шаповалов<sup>1</sup>, В.Г. Шавров<sup>2</sup>, А.П. Каманцев<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Донецкий физико-технический институт им. А.А. Галкина, Донецк, Украина <sup>2</sup> Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН, Москва, Россия E-mail: vashapovalov1@mail.ru

Поступила в Редакцию 10 июля 2018 г. В окончательной редакции 23 января 2019 г. Принята к публикации 23 января 2019 г.

Спектр спин-волнового резонанса (CBP) является характеристикой магнитной пленки. Поверхностная мода спектра зависит от величины и характера напряженного состояния поверхностного слоя пленки. Параметры этой моды не зависят от проводимости пленки. Измерена константа магнитострикции поверхностного слоя.

Ключевые слова: спин-волновой резонанс, константа магнитострикции, упругие деформации, магнитные пленки, параметры элементарных ячеек.

DOI: 10.21883/FTT.2019.07.47832.203

## 1. Введение

Исследованию поверхностных магнитостатических и спиновых волн в магнитных материалах посвящена монография [1]. Монография в основном носит теоретический характер. Поэтому мы предприняли экспериментальные исследования манганитовых пленок с целью обнаружения и изучения проявлений магнитострикции в поверхностных слоях пленок. Необходимым условием возбуждения спектра СВР в однородно намагниченной пленке однородным высокочастотным магнитным полем является наличие поверхностной анизотропии, отличающейся от объемной и определяющей характер и степень закрепления спинов на поверхностях пленки [2-14]. Динамическое закрепление спинов происходит в пленках с неоднородным распределением магнитных параметров по толщине пленки. Особенностью спектра ФМР, обусловленного динамическим закреплением спинов, является сильная зависимость его характера от ориентации плоскости пленки относительно направления внешнего магнитного поля. От этого зависит число возбуждаемых спин — волновых мод. Различная степень поверхностного закрепления спинов определяет положение, амплитуду и ширину объемных и поверхностных спин волновых мод. Поверхностная мода появляется при понижении степени закрепления спинов. Уменьшение степени закрепления приводит к уменьшению амплитуды поверхностной моды, не влияя на положение объемной моды. При полном отсутствии закрепления спинов поверхностная мода переходит в однородную моду.

## 2. Результаты

Впервые СВР в пленке манганита La<sub>0.7</sub>Mn<sub>1.3</sub>O<sub>3</sub>, имеющей малую проводимость, наблюдался нами в рабо-

те [15]. Исследования спектров ФМР были проведены на радиоспектрометре с частотой  $v = 9.756 \pm 0.001$  GHz в температурном диапазоне T = 4.2-300 K. Спектр ФМР приведен на рис. 1. Линии спектра CBP хорошо разрешены и имеют большую величину отношения сигнал—шум. В перпендикулярной ориентации наблюдается CBP-спектр, состоящий из одиннадцати хорошо разрешенных линий. Две из них (на высокополевой стороне) SM<sub>1</sub> и SM<sub>2</sub> являются поверхностными модами, линия I — однородной модой, а все остальные линии неоднородными модами.

В наших работах [2,17,9], кроме объемных спиновых волн, в спектре CBP были идентифицированы поверх-



**Рис. 1.** Спектр СВР в пленке  $La_{0.67}Ca_{0.33}MnO_3$ , T = 100 К. На вставке показаны моды 9–17, увеличенные в 5 раз. В СВР-спектре на высокополевой стороне SM<sub>1</sub> и SM<sub>2</sub> являются поверхностными модами [16].



**Рис. 2.** Спектр СВР в пленке La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>, выращенной на подложке SrTiO<sub>3</sub>, в перпендикулярной ориентации магнитного поля. Линия на высокополевой стороне — SM<sub>1</sub> является поверхностной модой.

ностные моды, теоретическое обоснование которых ранее было дано Puszkarski H. [18,19]. Изучена эволюция поверхностных мод. Показано, что вследствие изменения величины напряженного состояния поверхностного слоя пленок, форма поверхностной моды и ее положение в магнитном поле относительно однородной моды ФМР трансформируются. В работе [17] наблюдался классический спектр СВР, состоящий из 11 мод (рис. 1). В работе [9] наблюдался спектр СВР, состоящий из четко наблюдаемых 6 мод (рис. 2). На основании результатов исследования температурных и угловых зависимостей линий ФМР и СВР установлены характерные особенности СВР и основные характеристики исследуемой магнитной пленки: константы обмена и анизотропии, магнитная и структурная неоднородности.

Исследования угловых зависимостей спектра СВР в эпитаксиальной пленке La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>, выращенной на подложке титаната стронция SrTiO<sub>3</sub> [9], показали, что ширина линий в обеих ориентациях (параллельной и перпендикулярной) достаточно узкая ( $\Delta H \sim 0.2-0.5$  кOe) и слабо зависит от температуры ниже температуры магнитного фазового перехода  $T_C$ , что указывает на высокое сопротивление и качество исследуемой пленки.

Исследованы спектры ФМР и СВР в эпитаксиальных пленках  $La_{0.67}Ca_{0.33}MnO_3$ , выращенных на подложках ниобата лития LiNbO<sub>3</sub> (LNO), алюмината лантана LaAlO<sub>3</sub> (LAO) и титаната стронция SrTiO<sub>3</sub> (STO) [9], имеющих разные параметры решетки, которые отличаются от параметров решетки пленки. Исследования проводились в условиях упругой деформации пленки. Упругий характер напряжений в пленке обеспечивался тем, что различие параметров кристаллических решеток пленок и подложек невелико.

Рассмотрим кристаллическую структуру и механические напряжения в пленках. Пленки  $La_{0.67}Ca_{0.33}MnO_3$  толщиной 3000 Å выращены методом лазерного импульсного напыления на монокристаллических перовскитовых подложках LaAlO<sub>3</sub> и SrTiO<sub>3</sub> с ориентацией (001) и на неотожженных перовскитовых подложках LiNbO<sub>3</sub>, которые являются поликристаллическими. Толщина подложки составляла  $1.65 \cdot 10^{-2}$  см.

Монокристаллические перовскитовые подложки LaAlO<sub>3</sub> и SrTiO<sub>3</sub> имеют кубическую структуру с параметрами элементарной ячейки a = 3.788 Å и a = 3.903 Å соответственно. Параметры элементарных ячеек пленок La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>, нанесенных на подложки LAO и STO, равны a = b = 3.862 Å; c = 3.872 Å и a = b = 3.868 Å; c = 3.859 Å соответственно [20].

Подложка по сравнению с пленкой является массивной. Поэтому пленка оказывается в напряженном состоянии, которое носит упругий характер. Упругий характер напряжений в пленке обеспечивается тем, что различие параметров кристаллических решеток пленок и подложек невелико. Для подложек LaAlO<sub>3</sub> и SrTiO<sub>3</sub> эта разность составляет 0.084 Å и 0.044 Å соответственно.

В случае подложки SrTiO<sub>3</sub> в пленке возникают напряжения сжатия. Механическое напряжение  $\sigma$  является отрицательным. В случае подложки LaAlO<sub>3</sub> в пленке возникают напряжения растяжения. Механическое напряжение  $\sigma$  является положительным. Распределение напряжений по толщине в полученных пленках носит градиентный характер и обусловлен тем, что с одной стороны пленка примыкает к подложке, а с другой стороны поверхность пленки является свободной. С целью исключения возникновения напряженного состояния в пленке La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub> была выбрана подложка из поликристаллического LiNbO3. Дополнительный отжиг (монолитизация) для образования монокристалла не проводится. В поликристаллическом образце параметры элементарной ячейки такие же, как в монокристалле, но о какой-либо ориентации говорить нельзя.

Исследования спектров ФМР и СВР в эпитаксиальных пленках La<sub>0 67</sub>Ca<sub>0 33</sub>MnO<sub>3</sub>, выращенных на подложках ниобата лития LiNbO3 (LNO), алюмината лантана LaAlO<sub>3</sub> (LAO) и титаната стронция SrTiO<sub>3</sub> (STO) [9] были проведены на радиоспектрометре с частотой  $\nu = 9.756 \pm 0.001 \,\text{GHz}$  в температурном диапазоне  $T = 4.2 - 300 \, \text{K}$ . Спектр ФМР приведен на рис. 3. Как видно на рис. 3, в спектре ФМР наблюдаются две резонансные линии. Линия 1 является однородной модой спектра ФМР. На некотором расстоянии от нее в высоких полях наблюдается поверхностная мода спектра ФМР — SM<sub>1</sub>. В пленке, выращенной на подложке LiNbO<sub>3</sub>, расстояние между линией однородного резонанса 1 и линией поверхностной моды SM1 является максимальным (82 mT) для трех рассматриваемых случаев. Пленка в этом случае не напряжена.

В спектре ФМР в пленке, выращенной на подложке SrTiO<sub>3</sub>, расстояние между линиями однородного резонанса 1 и поверхностной моды  $SM_1$  равно 41 mT.

Пленка в этом случае напряжена, т.к. рассогласование параметров элементарных ячеек пленки и подложки равно 0.044 Å.

В спектре ФМР в пленке, выращенной на подложке LaAlO<sub>3</sub>, также наблюдаются линии однородного резонанса 1 и поверхностной моды SM<sub>1</sub>. Пленка в этом случае также напряжена, т.к. рассогласование параметров элементарных ячеек пленки и подложки равно 0.084 Å.

Ширина линии однородного резонанса 1 для пленки, выращенной на подложке ниобата лития, равна 30 mT. Ширина линии 1 для пленки, выращенной на подложке титаната стронция, равна 12 mT. По ширине линий однородного резонанса можно заключить, что в них сильно отличается величина проводимости, а именно проводимость пленки  $La_{0.67}Ca_{0.33}MnO_3$ , выращенной на подложке LiNbO<sub>3</sub>, намного больше проводимости пленки, выращенной на подложке SrTiO<sub>3</sub>. Поэтому спектр CBP для пленки, выращенной на подложке LiNbO<sub>3</sub> визуально отсутствует, а спектр пленки  $La_{0.67}Ca_{0.33}MnO_3$ , выращенной на подложке SrTiO<sub>3</sub>, состоит из 6 линий.

Из рассмотрения рис. З видно, что в исследуемых пленках, нанесенных на различные подложки, линия поверхностной моды  $SM_1$  находится на различном расстоянии от линии однородного резонанса 1 спектра ФМР. Это расстояние изменяется благодаря изменению магнитной анизотропии пленок. Магнитная анизотропия пленок изменяется в результате изменении напряженного состояния пленок из-за различия параметров элементарных ячеек пленок и подложек благодаря магнитострикционному механизму.

Определена константа магнитострикции поверхностного слоя пленки  $La_{0.67}Ca_{0.33}MnO_3$  на подложке SrTiO<sub>3</sub>. Напряжение  $\sigma$  в пленке создается разностью параметров элементарных ячеек подложки и пленки. В случае подложки SrTiO<sub>3</sub> эта разность составляет 0.044 Å. Пленка растянута. В случае подложки из поликристаллического ниобата лития пленка находится в ненапряженном состоянии.

Исследуемые образцы пленок La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>, выращенных на подложке титаната стронция, имеют малые размеры, и измерение радиуса кривизны затруднительно. Поэтому величина механического напряжения пленки рассчитывалась по разности параметров элементарных ячеек подложки и пленки в направлении, перпендикулярном плоскости пленки:

$$\sigma = 0.0617 \cdot 10^{12} \, \mathrm{din/cm^2},$$

где  $\sigma$  — напряжение в пленке, E — модуль Юнга [10] подложки  $3.03 \cdot 10^{12} \operatorname{din/cm}^2$ ,  $a_0 = 3.903$  Å и a = 3.859 Å — постоянные решетки для подложки и пленки соответственно,  $\nu = 0.276$  — коэффициент Пуассона.

Для определения константы магнитострикции пленки использовалась величина смещения резонансного поля линии 1 в результате напряжений. Величина резонансного поля линии однородного резонан-



**Рис. 3.** Спектры  $\Phi$ MP в пленках La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>Mn<sub>03</sub>, выращенных на подложках LiNbO<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub> и LaAlO<sub>3</sub>. На высокополевой стороне CBP-спектра расположена поверхностная мода SM<sub>1</sub>.

са ненапряженной пленки La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>, выращенной на подложке LiNbO<sub>3</sub>,  $H_1 = 900$  mT. Величина резонансного поля линии однородного резонанса пленки La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>, выращенной на подложке SrTiO<sub>3</sub>,  $H_1 = 840$  mT. То есть, в результате магнитострикции механическое напряжение  $\sigma = 0.0617 \cdot 10^{12}$  din/cm<sup>2</sup> приводит к смещению резонансного поля пленки  $H_{\rm film}$  на величину  $H_1 = 60$  mT. По величине этих изменений была определена константа магнитострикции пленки  $\lambda_{\rm film} = \Delta H \cdot M/3\sigma = -1.43 \cdot 10^{-6}$ , где M = 450 G — намагниченность насыщения.

Для определения константы магнитострикции поверхностного слоя пленки использовалась величина смещения резонансного поля линии SM<sub>1</sub> поверхностной моды пленки в результате приложенных напряжений. Значения резонансных магнитных полей в случае подложки LiNbO<sub>3</sub> следующие: для линии однородного резонанса  $H_1 = 900$  mT, для линии поверхностной моды  $H_{SM_1} = 982$  mT. Различие полей  $\Delta H_2 = 82$  mT.

В случае пленки La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub>, выращенной на подложке SrTiO<sub>3</sub>, значения резонансных магнит-

1249

ных полей следующие: для линии однородного резонанса  $H_1 = 840 \text{ mT}$ , для линии поверхностной моды  $H_{\text{SM}_1} = 881 \text{ mT}$ . Различие полей  $\Delta H_3 = 41 \text{ mT}$ .

Такое смещение линии поверхностной моды  $H = \Delta H_2 - \Delta H_3$  относительно линии однородной моды произошло вследствие механических напряжений, вызванных рассогласованием параметров элементарных ячеек пленки и подложки на 0.044 Å. Общее смещение резонансного поля линии поверхностной моды пленки  $\Delta H = 60 + (82 - 41) = 101$  mT.

По величине смещения линии SM<sub>1</sub> поверхностной моды благодаря магнитострикции можно оценить константу магнитострикции  $\lambda_{surface}$  поверхностного слоя пленки  $\lambda_{surface} = \Delta H \cdot M/3\sigma = -2.46 \cdot 10^{-6}$ . Таким образом, величина константы магнитострикции поверхностного слоя пленки  $\lambda_{surface}$  больше константы магнитострикции пленки  $\lambda_{film}$  в 1.7 раза.

# 3. Обсуждение результатов

Константа магнитострикции  $\lambda_{\text{film}}$  пленки меньше константы магнитострикции  $\lambda_{\text{surface}}$ , так как деформации в объеме пленки и на поверхности пленки при одинаковом напряжении разные из-за разного ближайшего окружения магнитных ионов. Деформация на поверхности пленки больше.

## 4. Заключение

Экспериментально обнаружено, что упругие статические деформации в пленках манганитов приводят к проявлению поверхностной моды спектра спинволнового резонанса. Параметры этой моды не зависят от проводимости пленки (рис. 3). Измерена константа магнитострикции поверхностного слоя пленки  $\lambda_{surface} = -6.023 \cdot 10^{-6}$ , которая больше магнитострикции пленки  $\lambda_{film} = -3.1987 \cdot 10^{-6}$  в 1.7 раза.

#### Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 18-07-01320.

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

# Список литературы

- [1] В.Г. Шавров, В.И. Щеглов. Магнитостатические волны в неоднородных полях. Физматлит, М. (2016). 360 с.
- [2] V. Shapovalov, V. Dyakonov, P. Aleshkevych, K. Dyakonov, I. Zhikharev, M. Kuzminski, H. Szymczak. Phys. Status Solidi B 244, 347 (2007).
- [3] C. Kittel. Phys. Rev. **110**, 1295 (1958); Phys. Rev. **82**, 440 (1951).
- [4] M. Farle. Rep. Prog. Phys. 61, 755 (1998).

- [5] V.N. Krivoruchko, S.I. Khartsev, A.D. Prokhorov, V.I. Kamenev, R. Szymczak, M. Baran, M. Berkowski. J. Magn. Magn. Mater. 207, 168 (1999).
- [6] J.R. Eshbach, R.W. Damon. Phys. Rev. 118, 1208 (1960).
- M. Hennion, F. Moussa, G. Biotteau, J. Rodríguez-Carvajal, L. Pinsard, A. Revcolevschi. Phys. Rev. B 61, 9513 (2000).
- [8] B. Hoekstra, R.P. van Stapele, J.M. Robertson. Appl. Phys. 48, 382 (1977).
- [9] В.А. Шаповалов. ФТВД 20, 56 (2010).
- [10] Ю.П. Сухоруков, Н.Н. Лошкарева, Е.А. Ганьшина, А.П. Кауль, О.Ю. Горбенко, Е.В. Мостовщикова, А.В. Телегин, А.Н. Виноградов, И.К. Родин. ФТТ 46, 1203 (2004).
- [11] В.А. Игнатченко, Р.С. Исхаков. ЖЭТФ 72, 1005 (1977).
- [12] А.Г. Гуревич. Магнитный резонанс в ферритах и антиферомагнетиках. Наука, М. (1973). 591 с.
- [13] T.G. Perring, G. Aeppli, S.M. Hayden, S.A. Carter, J.P. Remeika, S.-W. Cheong. Phys. Rev. Lett. 77, 711 (1996).
- [14] J.W. Lynn, R.W. Erwin, J.A. Borchers, Q. Huang, A. Santoro, J-L. Peng, Z.Y. Li. Phys. Rev. Lett. 76, 4046 (1996).
- [15] V. Dyakonov, A. Prohorov, V. Shapovalov, S. Khartsev, V. Krivoruchko, V. Mihailov, V. Pashchenko, E. Zubov, P. Aleshkevych, K. Dyakonov, S. Piechota, H. Szymczak. Phys. Lett. A 268, 202 (2000).
- [16] G. Wyckoff. Crystall Structures. Interacience. N.Y. (1965). 451 p.
- [17] V.P. Dyakonov, A. Prokhorov, V. Shapovalov, V. Krivoruchko, V. Pashchenko, E. Zubov, V. Mikhajlov, P. Aleshkevich, M. Berkowski, S. Piechota, H. Szymczak. J. Phys.: Condens. Matter. 13, 4049 (2001).
- [18] H. Pushkarski. Acta Phys. Polonica A 38, 217 (1970).
- [19] H. Pushkarski. Acta Phys. Polonica A 38, 899 (1970).
- [20] M.C. Martin, G. Shirane, Y. Endoh, K. Hirota, Y. Moritomo, Y. Tokura. Phys. Rev. B 53, 14285 (1996).

Редактор Т.Н. Василевская