

05;06;09

Феррогранатовые пленки с повышенной термостабильностью магнитных параметров

© С.И. Ющук, П.С. Костюк, И.Е. Лопатинский

Государственный университет "Львовская политехника",
290646 Львов, Украина

(Поступило в Редакцию 23 мая 1997 г.)

В интервале температур 213–353 К исследован ферромагнитный резонанс в феррогранатовых пленках $Y_3Fe_{5-x}Ga_xO_{12}$ ($0 \leq x \leq 0.63$), полученных методом жидкофазной эпитаксии (ЖФЭ) на подложках из галлий-гадолиниевого граната. Установлено, что при ЖФЭ коэффициент распределения галлия в пленках изменяется в пределах от 2.2 до 4.0 в зависимости от состава и условий выращивания. Установлена возможность температурной стабилизации резонансных магнитных полей за счет температурных изменений намагниченности насыщения и поля анизотропии.

В последние годы возрос интерес к применению монокристаллических пленок феррогранатов в микроволновых устройствах, работающих на магнитостатических волнах (МСВ) [1,2]. Основные требования к таким устройствам — наличие минимальных магнитных потерь при распространении МСВ и высокая частотная стабильность в рабочем диапазоне температур. Магнитные потери определяются шириной линии ΔH ферромагнитного резонанса (ФМР). Для пленок железо-иттриевого граната (ЖИГ) можно получить минимальные значения $\Delta H \leq 0.5$ Ое. Одним из способов повышения стабильности работы устройств на МСВ может быть применение в них феррогранатовых пленок с повышенной термостабильностью магнитных параметров. Однако пленки ЖИГ, используемые в устройствах на МСВ, обладая минимальными магнитными потерями, имеют неудовлетворительную термостабильность.

Настоящая работа посвящена поиску феррогранатовых пленок с минимальными значениями ширины линии ФМР и повышенной термостабильностью. С этой целью исследовалась возможность повышения термостабильности параметров пленок феррогранатов $Y_3Fe_{5-x}Ga_xO_{12}$ ($0 \leq x \leq 0.6$) за счет различного температурного хода намагниченности насыщения $4\pi M_s$ и поля анизотропии H_a .

Пленки выращивали методом жидкофазной эпитаксии путем изотермического погружения горизонтально расположенной подложки из галлий-гадолиниевого граната (ГГГ) ориентации (111) в переохлажденный раствор-расплав гранато-образующих окислов Fe_2O_3 , Y_2O_3 , Ga_2O_3 и флюса $PbO-B_2O_3$ общей массой 6 кг. Расчет состава шихты проводился по молярным соотношениям R_1-R_4 [3]. Эти соотношения выбирали из соображения стабильности гранатовой фазы для составов с различным содержанием ионов галлия. При изменении параметра x в химической формуле феррогранатовых пленок от 0.03 до 0.6 соотношения R_1-R_4 имели следующие значения или находились в пределах: $R_1 = 28.35-29.96$, $R_2 = 17.2-685.0$, $R_3 = 15.6$, $R_4 = 0.149$. Соотношение $R_2 = Fe_2O_3/Ga_2O_3$ характери-

зует количество окиси галлия, вводимой в шихту для замещения окиси железа. Высокие значения температур насыщения расплава 1200–1235 К были выбраны исходя из требования минимального вхождения ионов Pb^{2+} в эпитаксиальные слои [4].

Выращенные Ga:ЖИГ пленки с $x \leq 0.3$ толщиной 1–10 μm имели гладкую блестящую поверхность без наплывов и микротрещин. Однако по мере увеличения толщины пленок и содержания в них галлия качество поверхности ухудшалось. Вырастить качественные пленки со значениями $x \geq 0.6$ и толщиной более 5 μm не удалось из-за большой разницы параметров кристаллической решетки пленки и подложки $\Delta a \geq 0.015$ Å. Содержание ионов галлия в Ga:ЖИГ пленках по данным рентгеновского локального микроанализа несколько отличалось от расчетных значений (см. таблицу). Такое расхождение можно объяснить тем, что при расчете составов шихты не учитывалось изменение коэффициента распределения K_{Ga} [5] в зависимости от содержания галлия и температурных режимов роста. При расчетах шихты использовали значение $K_{Ga} = 2.2$. Коэффициент распределения галлия в пленках определяли из соотношения

$$K_{Ga} = \frac{\left(\frac{x_{Ga}}{x_{Ga}+x_{Fe}}\right)_f}{\left(\frac{x_{Ga}}{x_{Ga}+x_{Fe}}\right)_m}, \quad (1)$$

где x_{Ga} и x_{Fe} — содержание галлия и железа в пленке (f) и растворе-расплаве (m).

Как видно из таблицы, значения K_{Ga} для пленок Ga:ЖИГ с $x \leq 0.1$ значительно отличаются от литературных данных $K_{Ga} = 2.2$ [5].

Состав Ga:ЖИГ замещенных пленок зависит не только от состава раствора-расплава, но и от скорости их роста, которая в свою очередь зависит от степени переохлаждения расплава ΔT . Изменение в Ga:ЖИГ пленках концентрации ионов Ga^{3+} и Pb^{2+} приводит к изменению параметров $4\pi M_s$ и ΔH . На рис. 1 приведены зависимости скорости роста пленки f $4\pi M_s$ и ΔH от степени переохлаждения ΔT раствора-расплава с $x = 0.1$.

Составы Ga:ЖИГ пленок, параметры кристаллической решетки, коэффициенты распределения галлия

Расчетный состав* x	Состав ферритовой пленки x	Параметр решетки подложки ГТТ, Å	Параметр решетки пленки, Å	Коэффициент распределения Ga^{3+} , отн. ед.
0.03	0.028	12.3821	12.3723	4.0
0.05	0.053	12.3826	12.3718	3.1
0.1	0.140	12.3822	12.3735	2.8
0.3	0.380	12.3826	12.3708	2.4
0.5	0.560	12.3821	12.3691	2.4
0.6	0.630	—	—	2.2

* По содержанию окиси галлия в шихте.

Измерение параметров ФМР проводили по волноводной методике [6] на образцах диаметром 0.1 мм, изготовленных методом химического травления [7].

Из рис. 1 видно, что с возрастанием переохлаждения линейно увеличивается скорость роста пленок. Возрастает также и намагниченность насыщения. При изменении степени переохлаждения от 5 до 40 К коэффициент распределения K_{Ga} уменьшается в пределах от 3.39 до 2.23, что говорит об уменьшении в пленках содержания ионов Ga^{3+} . Так как ионы галлия замещают ионы Fe^{3+} преимущественно в тетраэдрических положениях, то это должно приводить к возрастанию намагниченности насыщения, что и наблюдается.

Что касается параметра ΔH , то на рис. 1 он проходит через минимум при $\Delta T = 18$ К и затем снова возрастает. Возрастание ΔH скорее всего обусловлено увеличением в пленках количества поступающих из шихты ионов Pb^{2+} , вхождение которых в ферритовую пленку пропорционально скорости ее роста [8]. Наличие минимума на кривой ΔH можно объяснить взаимной зарядовой компенсацией ионов Pb^{2+} и Pt^{4+} , последние из которых всегда имеются в небольшом количестве в шихте за счет платинового тигля [3].

На рис. 2 представлены зависимости ширины линии ФМР и поля анизотропии от содержания ионов галлия в

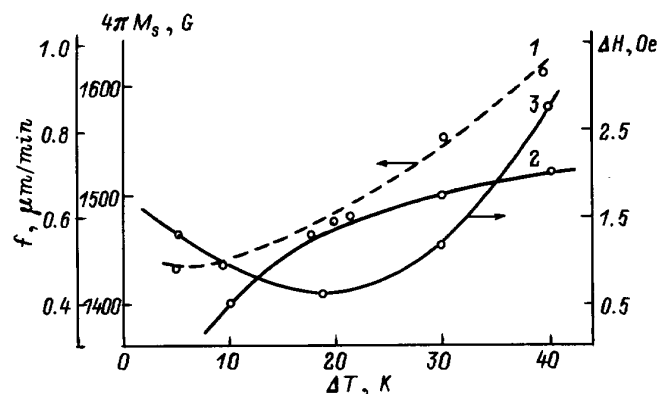


Рис. 1. Зависимости скорости роста f_p (1), намагниченности насыщения $4\pi M_s$ (2) и ширины линии ФМР ΔH (3) при $T = 295$ К от степени переохлаждения ΔT .

Ga:ЖИГ замещенных пленках, выращенных при одинаковой температуре переохлаждения $\Delta T = 10$ К. Видно, что с ростом содержания галлия в пленках ΔH сначала уменьшается, достигая минимального значения 0.2 Ое при $x = 0.18$. На этом же рисунке представлена кривая концентрационной зависимости поля анизотропии H_a , на которой также имеется острый минимум, несколько сдвинутый относительно минимума кривой ΔH . Можно сделать вывод, что эти зависимости коррелируют, т.е. ширина линии ФМР Ga:ЖИГ пленок зависит от величины поля анизотропии. Причем параметр ΔH Ga:ЖИГ монокристаллических пленок растет уже при значениях $x \geq 0.3$ в отличие от объемных Ga:ЖИГ монокристаллов, где ширина линии ФМР почти не изменяется до значения $x = 0.8$ [6].

Различие в поведении ΔH в пленках и монокристаллах обусловлено тем, что поле анизотропии в объемных монокристаллах имеет кристаллографическую природу, а в пленках оно состоит из трех составляющих: магнито-кристаллической, наведенной напряжениями и индуцированной в процессе роста. Наличие в пленках наведенной и индуцированной ростом составляющих анизотропии вызвано особенностями технологии их получения.

Увеличение поля анизотропии в Ga:ЖИГ пленках с увеличением содержания галлия (рис. 2) связано с

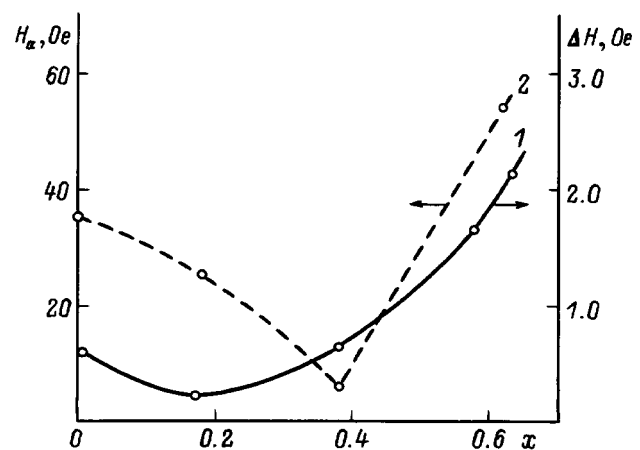


Рис. 2. Зависимости ширины линии ФМР ΔH (1) при $T = 295$ К и поля анизотропии H_a (2) от содержания ионов галлия (x) в пленках $Y_3Fe_{5-x}Ga_xO_{12}$.

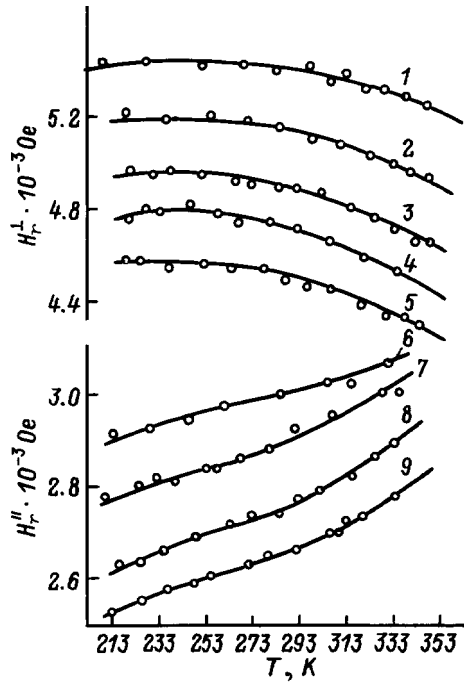


Рис. 3. Температурные зависимости резонансных полей H_r^\perp и H_r^\parallel для пленок $Y_3Fe_{5-x}Ga_xO_{12}$: $x = 0$ (1, 9); 0.14 (2, 8); 0.38 (3, 7); 0.56 (4); 0.63 (5, 6).

ростом упругих напряжений, возникающих в системе пленка–подложка из-за несоответствия параметров их кристаллических решеток. По данным наших измерений, с возрастанием x от 0.1 до 1.0 разница параметров решеток пленки и подложки возрастает от 0.0087 до 0.0206 Å, что приводит при больших несоответствиях к появлению трещин в пленках с $x = 1.0$.

Для Ga:ЖИГ пленок с разными x нами были измерены температурные зависимости намагниченности насыщения, поля анизотропии и резонансных полей. Интервал температур 213–353 К соответствует наиболее реальным рабочим температурам микроволновых приборов, в которых могут быть использованы ферритовые пленки. Резонансные поля H_r^\perp и H_r^\parallel измеряли при направлениях постоянного магнитного поля, нормальном (перпендикулярный резонанс) и касательном (параллельный резонанс) к плоскости пленки. Результаты измерений температурных зависимостей резонансных полей H_r^\perp и H_r^\parallel для пленок Ga:ЖИГ различного состава приведены на рис. 3. Как видно из рис. 3, при данной температуре величина резонансного поля H_r^\perp уменьшается примерно на 100–150 Oe при увеличении содержания галлия в ферритовой пленке на 0.1 атома на формульную единицу (кривые 1–5). При параллельном резонансе величина H_r^\parallel возрастает на 50–100 Oe с увеличением параметра x на 0.1 (кривые 6–9). Для перпендикулярного резонанса [9]

$$\frac{\omega_\perp}{\gamma} = H_r^\perp - 4\pi M_s + H_a, \quad (2)$$

где ω_\perp — резонансная частота; γ — гиромагнитное отношение, равное 2.8 МГц/Oe; значение резонансного поля H_r^\perp определяется частотой СВЧ поля, намагниченностью насыщения $4\pi M_s$ и полем анизотропии H_a .

Для продольного резонанса, где

$$\frac{\omega_\parallel}{\gamma} = \sqrt{(H_r^\parallel + H_a)(H_r^\parallel + 4\pi M_s + H_a)}, \quad (3)$$

при условии постоянства частоты с уменьшением намагниченности насыщения резонансное поле должно возрастать. Следовательно, при постоянной частоте для ферритовых пленок с различным содержанием галлия величины H_r^\perp , H_r^\parallel и их изменения с температурой определяются параметрами $4\pi M_s$, H_a и температурными изменениями последних (рис. 4). Как следует из рис. 4, а, с увеличением содержания ионов Ga^{3+} в пленках наряду с уменьшением намагниченности насыщения (кривые 5–8) изменяется и ее температурная зависимость. При возрастании температуры от 213 до 353 К для чистого ЖИГ наклон кривой 5 составляет 2.9 Gs/K, а для пленок с $x = 0.38$ он равен 2.0 Gs/K (кривая 8).

Как видно из рис. 4, б, в исследованном температурном интервале поле анизотропии Ga:ЖИГ пленок при малых степенях замещения ($x = 0.14$) изменяется незначительно по сравнению с чистым ЖИГ, при $x = 0.38$ оно заметно уменьшается, а при больших замещениях ($x = 0.63$) заметно увеличивается. Из рис. 4, б видно, что для состава с большим замещением $x = 0.63$ (кривая 1) температурные изменения поля анизотропии самые малые.

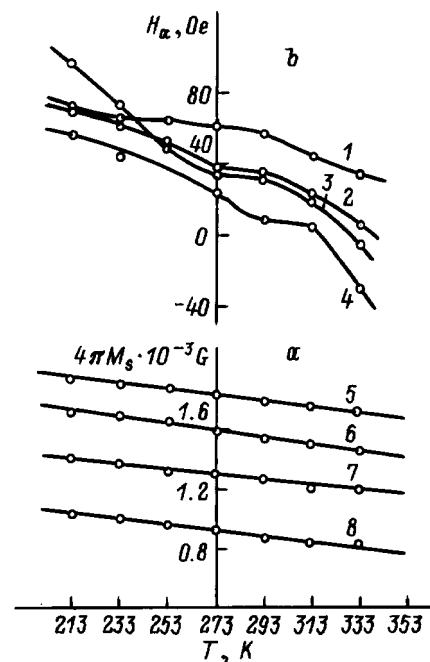


Рис. 4. Температурные зависимости намагниченности насыщения (а) и поля анизотропии (б) ферритовых пленок $Y_3Fe_{5-x}Ga_xO_{12}$: $x = 0.63$ (1); 0.14 (2, 6); 0 (3, 5); 0.38 (4, 8); 0.23 (7).

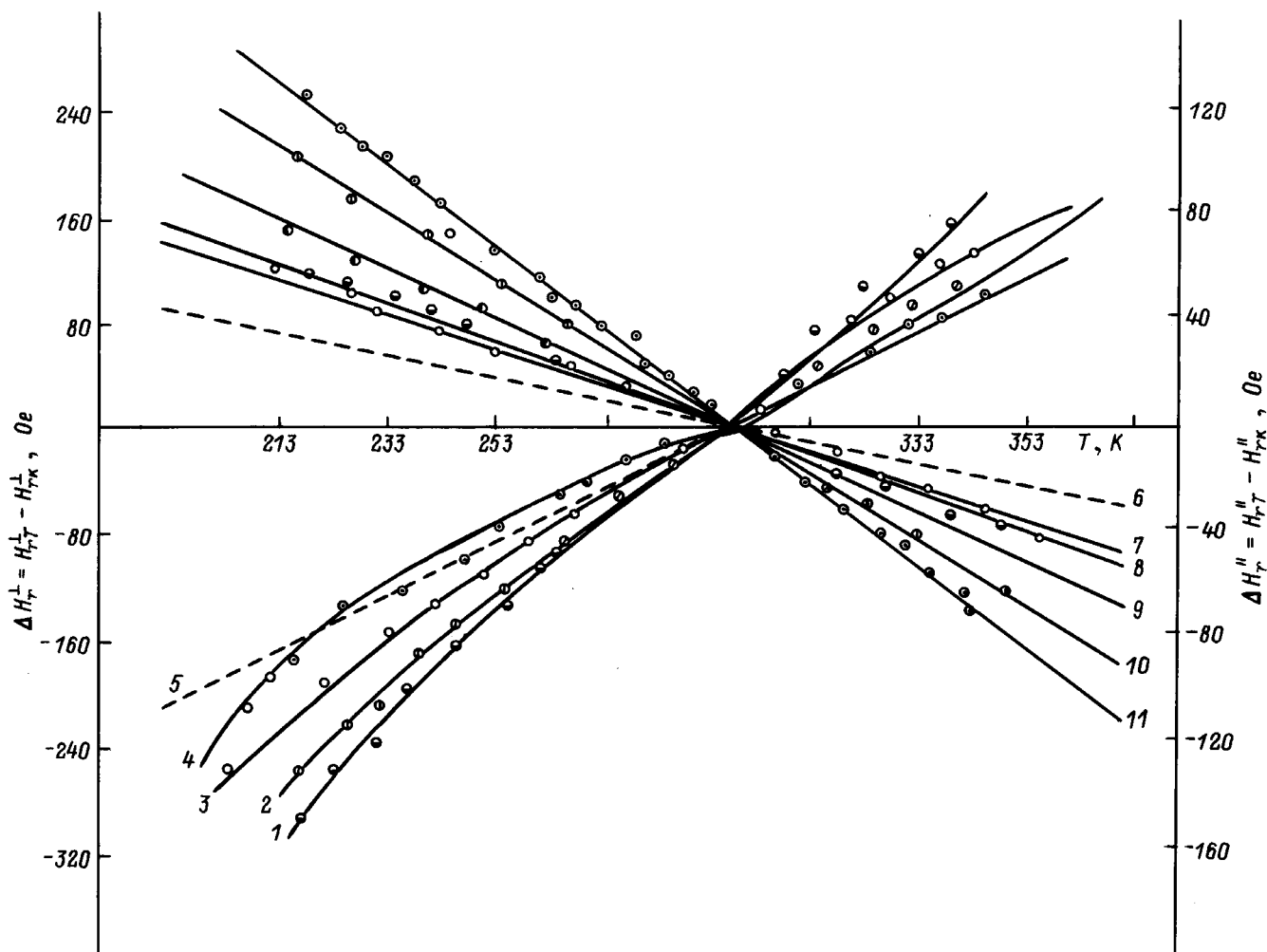


Рис. 5. Температурные зависимости ухода резонансного поля при параллельном ΔH_r^{\parallel} и перпендикулярном ΔH_r^{\perp} резонансах: $x = 0$ (1, 11), 0.14 (2, 10), 0.38 (3, 9), 0.63 (4, 7), 0.56 (8); 5, 6 — кривые с наклоном $\alpha_5 = \alpha_6 = 1.0$ Ое/К.

В соответствии с (2), (3) для поддержания постоянной рабочей частоты микроволновых устройств, т.е. для повышения их термостабильности, необходимо, чтобы величина температурных изменений резонансного поля компенсировалась суммарной величиной температурных изменений $4\pi M_s$ и H_a . На практике температурный уход резонансной частоты от фиксированного значения определяется изменением резонансного поля с температурой относительно его значения при комнатной температуре T_k .

На рис. 5 для ферритовых пленок Ga:ЖИГ с $x = 0-0.63$ представлены температурные зависимости ухода резонансного поля при параллельном $\Delta H_r^{\parallel} = H_{rT}^{\parallel} - H_{rk}^{\parallel}$ и перпендикулярном $\Delta H_r^{\perp} = H_{rT}^{\perp} - H_{rk}^{\perp}$ резонансах, где H_{rT}^{\parallel} и H_{rT}^{\perp} — резонансные поля при температуре T , а H_{rk}^{\parallel} и H_{rk}^{\perp} — при T_k . Из рис. 5 видно, что с увеличением количества ионов Ga^{3+} в пленках наклоны кривых $\Delta H_r^{\parallel}(T)$ и $\Delta H_r^{\perp}(T)$ заметно уменьшаются. Так, для пленки с $x = 0.63$ наклон кривой $\Delta H_r^{\perp}(T)$ уменьшается более чем в 2 раза по сравнению

с кривой для пленки чистого ЖИГ: $\alpha_7 = 1.4$ Ое/К и $\alpha_{11} = 3.2$ Ое/К соответственно. Для сравнения для обоих резонансов на рис. 5 приведены штриховые кривые с наклоном $\alpha_5 = \alpha_6 = 1.0$ Ое/К.

Из сравнения температурных зависимостей $\Delta H_r^{\parallel}(T)$ и $\Delta H_r^{\perp}(T)$ видно, что для пленок одного состава кривая ухода резонансного поля при параллельном резонансе более пологая, чем при перпендикулярном. Так, для пленки с $x = 0.63$ в одинаковом интервале температур при перпендикулярном резонансе $\alpha_7 = 1.4$ Ое/К, а при параллельном $\alpha_4 = 1.0$ Ое/К.

Таким образом, замещение в пленках ЖИГ ионов Fe^{3+} немагнитными ионами Ga^{3+} позволяет повысить температурную стабильность резонансного поля, но при этом возрастает ширина линии ФМР. Кроме того, не удастся вырастить толстые пленки с большим содержанием галлия ($x \geq 0.63$) из-за возникающих механических напряжений, обусловленных возрастающей разницей параметров кристаллической решетки пленки и подложки.

Список литературы

- [1] *Адам М.Р., Шродер Д.К.* // Электроника. 1980. Т. 53. № 11. С. 74–84.
- [2] *Никитов В.А., Никитов С.А.* // Зарубежная электроника. 1981. № 12. С. 11–23.
- [3] *Балбашов А.М., Червоненкис А.Я.* Магнитные материалы для микроэлектроники. М.: Энергия, 1979. С. 159.
- [4] *Glass H.L., Elliot M.T.* // J. Cryst. Growth. 1974. Vol. 27. P. 253–260.
- [5] *Эшенфельдер А.* Физика и техника цилиндрических магнитных доменов. М.: Мир, 1983. С. 334.
- [6] *Яковлев Ю.М., Генделев С.Ш.* Монокристаллы ферритов в радиоэлектронике. М.: Сов. радио, 1975. С. 269.
- [7] *Ющук С.И., Костюк П.С.* // ПТЭ. 1996. Т. 39. № 6. С. 79–81.
- [8] *Glass H.L.* // J. Cryst. Growth. 1977. Vol. 33. N 1. P. 183–188.
- [9] *Glass H.L., Liaw H.W., Elliott M.T.* // Mat. Res. Bull. 1977. Vol. 12. P. 735–740.