Math-Net.Ru

Общероссийский математический портал

Л. А. Митлина, А. А. Сидоров, Г. С. Бадртдинов, Несовершенство структуры, магнитные и СВЧ свойства монокристаллических пленок марганцевых феррошпинелей, *Вестн. Сам. гос. техн. ун-та. Сер. Физ.-мат. науки*, 2008, выпуск 1(), 136–140

DOI: <https://doi.org/10.14498/vsgtu585>

Использование Общероссийского математического портала Math-Net.Ru подразумевает, что вы прочитали и согласны с пользовательским соглашением

<http://www.mathnet.ru/rus/agreement>

Параметры загрузки:

IP: 54.172.240.79

26 апреля 2023 г., 17:43:15

УДК 537.635

Л. А. Митлина, А. А. Сидоров, Г. С. Бадртдинов

НЕСОВЕРШЕНСТВО СТРУКТУРЫ, МАГНИТНЫЕ И СВЧ СВОЙСТВА МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПЛЁНОК МАРГАНЦЕВЫХ ФЕРРОШПИНЕЛЕЙ

Рассмотрено влияние степени дефектности структуры на параметры ферромагнитного резонанса и магнитной анизотропии монокристаллических плёнок феррошпинелей. Оценены внутренние напряжения, характеристики наведённой одноосной анизотропии в плоскости плёнки. Получено удовлетворительное согласие констант одноосной анизотропии, определённых методом вращательных моментов и методом ферромагнитного резонанса.

Введение. Многие физические свойства плёнок феррошпинелей зависят от несовершенства кристаллического строения, которые определяются технологическими условиями синтеза [1]. Плёнкам феррошпинелей свойственны следующие несовершенства: точечные дефекты (вакансии, междоузельные и примесные атомы) [2]; дислокации и их скопления [3, 4]; дисперсность мозаичных блоков и степень их разориентировки [5], микродеформации (микронапряжения) [5].

Внутренние напряжения в плёнках феррошпинелей определялись методом рентгеновской тензометрии [5, 6], по радиусу кривизны [7], методом ферромагнитного резонанса [8]. Значительными внутренними напряжениями объясняются некоторые особенности магнитных свойств: магнитной анизотропии, доменной структуры, спектров ферромагнитного резонанса [7, 8]. В упругодеформированной плёнке внутренние напряжения могут изменить направления вектора намагниченности [9], а также привести к дисперсии магнитной анизотропии в случае неравномерного их распределения.

В данной работе предпринята попытка изучения влияния выше указанных структурных особенностей на магнитные свойства плёнок марганцевых феррошпинелей: параметры ферромагнитного резонанса, магнитную анизотропию.

Объекты и методы исследования. Для исследования были выбраны плёнки исходного состава $Mn_xFe_{3-x}O_4$ с $x = 1; 0,65$, выращенные методом химических транспортных реакций на свежих сколах (001) плоскости оксида магния.

При выборе химического состава феррошпинелей исходили из потенциальных возможностей практического применения данного типа феррошпинелей в СВЧ устройствах из-за высокой намагниченности ($\sim 3000\text{--}5000$ Гс) и больших полей анизотропии ($\sim 100\text{--}200$ Э).

По данным рентгеноструктурного и микроструктурного анализов синтезированные образцы однофазны и имеют структуру шпинели с химическим составом, сдвинутым в сторону обогащения марганцем.

Рис. 1. Блок-схема установки ФМР: 1 — СШ-генератор, 2 — аттенуатор, 3 — вентиль, 4 — резонатор, 5 — детекторная секция, 6 — потенциометр двухкоординатный самопишущий, 7 — вольтметр, 8 — датчик Холла, 9 — миллиамперметр, 10 — блок питания датчика, 11 — электромагнит, 12 и 13 — источники питания

Исследование спектров ферромагнитного резонанса (ФМР) проводилось на полуавтоматизированной установке в трёх сантиметровом диапазоне длин волн (рис. 1). При помощи специального приспособления образец можно было ориентировать своими кристаллографическими осями по отношению к полю электромагнита. Измерения проводились в плоскости (001), в которой расположены два основных направления [100] и [110].

Для расчёта констант анизотропии из кривых вращательных моментов использован метод наименьших квадратов [10, 11], позволивший рассчитывать гармоники вплоть до восьмого порядка. При этом $K_1 = \frac{C_0}{V}(2A_4 + 2A_8)$; $K_u = \frac{C_0}{V}\sqrt{A_2^2 + B_2^2}$; $\beta = \arctg\left(-\frac{A_2}{B_2}\right)$, где A_n и B_n — амплитуды n -ой

гармоники соответственно при $\sin \varphi$ и $\cos \varphi$; C_0 — упругая постоянная нити; V — объём образца; β — угол ориентации оси наведённой магнитной анизотропии относительно направления [100].

Результаты эксперимента и их обсуждение. В монокристаллических плёнках с отрицательным значением первой константы кристаллографической анизотропии, к которым относятся плёнки феррошпинелей, направления лёгкого намагничивания совпадают для плоскости (001) с кристаллографическим направлением [110], трудного намагничивания — с [100]. Экспериментально для плёнок феррошпинелей это подтверждается на зависимости намагниченности от величины магнитного поля

(рис. 2) и ориентационной зависимости поля резонанса (рис. 3)

Одной из важнейших характеристик плёнок является ширина линии ферромагнитного резонанса (ФМР). Из данных о ширине линии ФМР (ΔH) и резонансного поля (H) может быть вычислен коэффициент затухания $\alpha = \frac{\Delta H}{H}$, характеризующий процессы релаксации магнитного момента в плёнке и определяющий пригодность её для работы в том или ином диапазоне частот.

Исследования ФМР в плёнках (табл. 1) показали, что ширина линии больше в направлении [110], чем в [100], коэффициент затухания составляет $\sim 10^{-2}$, что согласуется с данными для объёмных феррошпинелей [12].

Наибольшая анизотропия ΔH для кристаллографических направлений [110] и [100] характерна для образцов с анизотропным распределением дислокаций по поверхности образца (рис. 4)

На ширину линии ФМР существенное влияние оказывает давление воздуха в камере синтеза. Увеличение давления воздуха в 2,5 раза приводит к росту удельного сопротивления, что свидетельствует о снижении концентрации анионных вакансий, т.е. переходу $\text{Fe}^{2+} \rightarrow \text{Fe}^{3+}$, и соответственно к уменьшению ширины линии ФМР в 2–4 раза (табл. 2).

Степень пластической деформации плёнок, произошедшей в процессе роста и последующего охлаждения, существенно влияет на частотную зависимость ΔH (рис. 5). Наиболее резкая зависимость ΔH от частоты наблюдается для плёнок исходного состава MnFe_2O_4 с анизотропным распределением дислокаций.

Знание резонансных полей для различных кристаллографических направлений позволяет произвести оценку внутренних напряжений.

Условия резонанса для кристаллографических направлений [100] и [110], находящихся в плоскости плёнок феррошпинелей (001), определяются соотношениями [13]:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left(H_{100} + \frac{2K_1}{M_s}\right) \left(H_{100} + \frac{2K_1}{M_s} + 4\pi \left(M_s + \frac{3\lambda_{100}\sigma}{4\pi M_s}\right)\right),$$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left(H_{110} - \frac{2K_1}{M_s}\right) \left(H_{110} + \frac{2K_1}{M_s} + 4\pi \left(M_s + \frac{3\lambda_{110}\sigma}{4\pi M_s}\right)\right).$$

Рис. 2. Зависимость намагниченности плёнки марганцевого феррита от величины магнитного поля в различных кристаллографических направлениях: 1 — [110], 2 — [100], 3 — [001]

Рис. 3. Ориентационная зависимость поля резонанса в плоскости плёнки на частоте 11,68 ГГц

Таблица 1

Резонансные параметры плёнок исходного состава MnFe_2O_4							
№ образца	Частота, ГГц	Резонансные поля		Полуширина резонансной кривой		Коэффициент затухания	
		H_{100} , Э	H_{110} , Э	ΔH_{100} , Э	ΔH_{110} , Э	α_{100}	α_{110}
A-98	8,82	2042	1736	19,9	38,7	$9,7 \cdot 10^{-3}$	$3,2 \cdot 10^{-2}$
A-90	10,89	2230	1920	20	28	$8,9 \cdot 10^{-3}$	$1,45 \cdot 10^{-2}$
A-92	10,89	2160	1880	43	52	$2,0 \cdot 10^{-2}$	$2,7 \cdot 10^{-2}$
A-118	8,82	1798	1486	18,8	81	$1,05 \cdot 10^{-2}$	$5,4 \cdot 10^{-2}$
A-88	9,7	2300	1968	17	23	$7,3 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$

Таблица 2

Влияние давления воздуха в камере синтеза на резонансные параметры плёнок исходного состава MnFe_2O_4

Давление воздуха в камере синтеза, Па	Толщина плёнки, мкм	Удельное сопротивление, Ом·см	Резонансные поля		Поле анизотропии H_a , Э	Ширина линии ФМР	
			H_{110} , Э	H_{100} , Э		ΔH_{100} , Э	ΔH_{110} , Э
$1,1 \cdot 10^3$	33	$3 \cdot 10^2$	2161	2023	110	72	90
	50	$1 \cdot 10^2$	2186	1973	170	79	90
	55	$2 \cdot 10^2$	2073	1985	70	84	110
$27 \cdot 10^3$	30	$2 \cdot 10^2$	1960	1859	81	16	24
	23	$1 \cdot 10^2$	1997	1872	100	16	21
	46	$7 \cdot 10^2$	1960	1872	70	31,4	49

Рис. 4. Дислокационная структура плёнки исходного состава MnFe_2O_4 (образец А-118); увеличено в 150 раз

Рис. 5. Частотная зависимость ΔH для плёнок исходного состава $\text{Mn}_{0,65}\text{Fe}_{2,35}\text{O}_4$ с хаотическим распределением дислокаций по поверхности (1) и короткими скоплениями (3); для плёнок исходного состава MnFe_2O_4 с короткими скоплениями (2) и мощными скоплениями дислокаций (4)

В плоскости (001) кубических кристаллов существует приближенное равенство для резонансного поля:

$$H_{\text{рез}} = \frac{\omega}{\gamma} - \frac{K_1}{2M_{\text{эфф}}} \left(\frac{3}{2} + \frac{5}{2} \cos 4\varphi \right).$$

Из этого равенства для H_a и $4\pi M_{\text{эфф}}$ с учётом $\varphi_1 = 0$ и $\varphi_2 = \frac{\pi}{4}$, если этим углам соответствуют резонансные H_{100} и H_{110} , следуют выражения:

$$H_a = -\frac{4}{5}(H_{100} - H_{110}), \quad 4\pi M_{\text{эфф}} = \frac{(H_{110} + \frac{H_a}{2})(H_{110} - H_a) - (H_{100} + H_a)^2}{H_{100} - H_{110} + 2H_a}.$$

Учитывая что $4\pi M_{\text{эфф}} = 4\pi M_s + 3\lambda_{100}\sigma/M_s$, где $\lambda_{100} = -28,8 \cdot 10^{-6}$ [14] для марганцевого феррита, были оценены остаточные внутренние напряжения для плёнок исходного состава MnFe_2O_4 .

В табл. 3 приведены резонансные поля на частоте 9,75 ГГц, эффективная намагниченность ($4\pi M_{\text{эфф}}$), поле анизотропии (H_a), значение первой константы кристаллографической анизотропии (K_1) определённой методом вращательных моментов.

В табл. 4 приведены значения константы одноосной анизотропии в плоскости плёнки ($K_u^{\text{экс}}$), определённой методом вращательных моментов, расчётные значения внутренних напряжений (σ), константы одноосной анизотропии ($K_u^{\text{расч}}$), угла отклонения (θ) оси лёгкого намагничивания от [110] и угла β между осью [100] и направлением одноосной анизотропии.

Для расчёта K_u , θ и β использовались выражения, предложенные в работе [9]:

$$K_u^2 = \frac{1}{16} \left[\frac{(\sigma_x - \sigma_z)^2 \beta_1^2}{(C_{11} - C_{12})^2} + \frac{\beta_2^2 \sigma_{xz}^2}{C_{44}^2} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad \theta = \frac{\beta_1 (\sigma_x - \sigma_z)}{4K_1 (C_{11} - C_{12})}, \quad \text{tg}^2 \beta = \frac{\beta_1 (\sigma_x - \sigma_z) C_{44}}{\beta_2 \sigma_{xz} (C_{11} - C_{12})},$$

Таблица 3

Магнитные параметры плёнок исходного состава MnFe_2O_4

№ образца	H_{100} , Э	H_{110} , Э	H_a , Э	$4\pi M_{\text{эфф}}$, Гс	$\frac{2K_1}{H_a}$, Гс	$K_1 \cdot 10^{-4}$, эрг·см $^{-3}$
A-98	2250	1950	240	3198	243	-2,95
A-102	2188	1906	226	3318	242	-2,77
A-104	2210	1910	240	3530	231	-2,58
A-119	2125	1834	233	3213	208	-3,65
A-89	2250	1930	256	3407	255	-2,38
A-82	2160	1880	224	3276	313	-3,26
A-92	2130	1880	200	3234	287	-3,5
A-112	2126	1834	234	3221	282	-2,87

Таблица 4

Технологические условия получения, внутренние напряжения и характеристики одноосной анизотропии в плоскости плёнки

№ образца	σ , МПа	$K_u^{\text{расч}}$, эрг·см $^{-3}$	$K_u^{\text{эксп}}$, эрг·см $^{-3}$	θ	$\beta^{\text{расч}}$	$\beta^{\text{эксп}}$	T_c , °C	$\frac{d_{\text{под}}}{d_{\text{пл}}}$	v_p , мкм/мин	$v_{\text{охл}}$, град/мин
A-98	38,6	1170	2000	2°15'	24°26'	33°	1060	36	2,2	300
A-102	76,84	2350	2700	4°34'	30°51'	34°	1060	30	2,2	300
A-104	168,77	5140	4400	10°46'	30°6'	23°	1060	32	2,2	600

где $\beta_1 = -\frac{3}{2}\lambda_{100}(C_{11} - C_{12})$, $\beta_2 = -\frac{3}{2}\lambda_{111}C_{44}$ — магнитоупругие константы [14].

Для расчёта напряжений σ_z , σ_{xz} использовались формулы [15, 16] для относительной упругой деформации: $\varepsilon_{\text{упр}} = \frac{\sigma(1-\nu)}{E}$; для деформации, обусловленной эффектом Пуассона, $\varepsilon_z = -\frac{2\nu}{1-\nu} \cdot \varepsilon_{\text{упр}}$; $\sigma_{xz} \sim \frac{\sigma}{2}$ — напряжение сдвига для системы $\{110\} \langle \bar{1}\bar{1}0 \rangle$ с точечной симметрией кристалла $m\bar{3}m$, к которой относятся феррошпинели.

Закономерности изменения микроструктуры и внутренних напряжений в плёнках феррошпинелей определяются условиями синтеза, в частности скоростью роста (v_p), скоростью охлаждения ($v_{\text{охл}}$), температурой синтеза (T_c), соотношением толщины подложки и плёнки ($d_{\text{под}}/d_{\text{пл}}$). При сравнительно одинаковых T_c , v_p , $d_{\text{под}}/d_{\text{пл}}$ внутренние напряжения увеличиваются с ростом скорости охлаждения (табл. 4). При этом соответственно растут значения константы одноосной анизотропии и угол (θ) отклонения ОЛН от направления $[110]$. Первая константа (табл. 3) и угол между $[100]$ и осью наведённой анизотропии изменяются незначительно.

Наличие блоков и других структурных дефектов является причиной неоднородности магнитной структуры монокристаллических плёнок феррошпинелей [1]. Их можно рассматривать как результат воздействия на намагниченность различного рода внутренних полей — полей наведённой и кристаллографической анизотропии. Полную ширину линии ФМР можно представить в виде трёх слагаемых [17]:

$$\Delta H = \Delta H^0 + \Delta H^K + \Delta H^\theta,$$

где ΔH^0 — собственная ширина линии ФМР, ΔH^K — уширение, связанное с амплитудной дисперсией анизотропии, ΔH^θ — уширение, обусловленное угловой дисперсией. При больших частотах $\Delta H^\theta \sim 2H_a \cdot \theta^2$, где θ — угол отклонения оси лёгкого намагничивания блока от среднего направления ОЛН. Величина ΔH^K в среднем для всех блоков $\sim M \cdot \theta$.

Расчёт (табл. 5) показывает, что экспериментальные значения ширины линии ФМР удовлетворительно описываются уширением, связанным с амплитудой дисперсионной анизотропии.

Проведённые исследования показали, что для всех рассматриваемых образцов имеет место отклонение ОЛН от направления $[110]$. Константы одноосной анизотропии, определённые различными методами, совпадают по порядку величины. Наблюдается

Таблица 5

Экспериментальная и расчётная ширина линии ФМР

№ образца	θ , рад	$\frac{2K_1}{H_a}$	H_a	ΔH^K	ΔH^0	$\Delta H^{\text{расч}}$	$\Delta H_{100}^{\text{экс}}$
A-102	0,0378	242	240	19,43	1,45	20,88	23,9
A-119	0,17577	208	237,8	36,56	7,35	43,93	43

тенденция уменьшения константы одноосной анизотропии с ростом степени пластической деформации, что не противоречит выводам работы [18].

Плётки феррошпинелей, полученные газофазным методом, в силу трёхмерного роста [1] имеют блочную структуру с размером блоков $\sim 3\text{--}600$ мкм в зависимости от химического состава и технологических условий. Размеры блоков превышают радиусы обменного взаимодействия $\sim 30\text{--}90$ нм [6]. Такие плётки в целом должны характеризоваться [19] разбросом локальных осей лёгкого намагничивания. А наличие угловой дисперсии анизотропии должно приводить к различию интегральных характеристик плёнок.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Митлина, Л. А. Физико-химические основы получения, дефектность структуры и свойства монокристаллических плёнок феррошпинелей [Текст] / Л. А. Митлина // Вестн. Сам. гос. техн. ун-та. Сер: Физ.-мат. науки. — 2004. — № 30. — С. 114–149. — ISBN 5-7964-0622-1.
2. Митлина, Л. А. Структурные дефекты и явления переноса в эпитаксиальных феррошпинелях [Текст] / Л. А. Митлина, А. Д. Харламов, И. В. Колосова, А. Е. Левин // Вестн. Сам. гос. техн. ун-та. Сер: Физ.-мат. науки. — 1998. — № 6. — С. 47–54. — ISBN 5-7964-0084-3.
3. Alekscandrov, L. N. Dislocation structure of epitaxial ferromagnetic films [Text] / L. N. Alekscandrov, L. A. Mitlina, A. L. Vasilyev, V. A. Mikhailov // Cryst. Res. Technol. — 1986. — Vol. 20, No. 1. — P. 89–95.
4. Fitzgerald, A. G. Defects in epitaxial ferrite films grown by chemical vapour deposition [Text] / A. G. Fitzgerald, G. May // Thin Solid Films. — 1976. — Vol. 35, No. 2. — P. 201–213.
5. Алавердова, О. Г. Неоднородность деформации и субструктура эпитаксиальных слоев $\text{Mg}_x\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_2\text{O}_4/\text{MgO}$ [Текст] / О. Г. Алавердова, Л. П. Коваль, И. Ф. Михайлов и др. // Изв. АН СССР. Неорганические материалы. — 1982. — Т. 18, № 6. — С. 1020–1024.
6. Беккер, Я. М. Механические напряжения в плёнках ферритов их магнитные свойства [Текст] / Я. М. Беккер, Г. М. Зотова, С. А. Майоров // В сб. Магнитные плёнки. — Минск: Высшая школа. — 1974. — С. 68–72.
7. Митлина, Л. А. Анизотропия плёночных монокристаллов магний-марганцевого феррита наведённая пластической деформацией [Текст] / Л. А. Митлина, А. В. Пец, В. В. Молчанов // Изв. вузов. Физика. — 1982. — № 3. — С. 31–34.
8. Митлина, Л. А. Неоднородные моды ФМР в плёнках марганцевых феррошпинелей [Текст] / Л. А. Митлина, А. А. Сидоров, А. Д. Харламов // Изв. вузов. Физика. — 1987. — № 11. — С. 57–61.
9. Березин, Д. Г. О природе одноосной анизотропии в монокристаллических плёнках Li феррита [Текст] / Д. Г. Березин, В. П. Гаврилин // Магнетизм и электроника (ферритовые плёнки). — 1982. — Т. 104. — С. 141–144.
10. Митлина, Л. А. Магнитная анизотропия плёнок марганцевого феррита [Текст] / Л. А. Митлина, А. А. Сидоров, А. Л. Васильев // Магнитные свойства кристаллических и аморфных материалов: Сб. научн. трудов. — Иркутск: ИГПИ, 1983. — С. 171–173.
11. Митлин, В. М. К методике обработки кривых вращательных моментов плёнок на ЭВМ [Текст] / В. М. Митлин, А. А. Сидоров // Магнетизм и электроника: Сб. научн. тр. — Куйбышев: КГПИ. — 1980. — С. 153–156.
12. Белов, К. П. Магнитные и СВЧ свойства монокристаллов магний-марганцевых ферритов [Текст] / К. П. Белов, Ф. В. Белов, А. В. Залесский, А. А. Попова // В сб.: Ферриты. — Минск: Изд. АН БССР, 1960. — С. 83–88.
13. Гуревич, А. Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках [Текст] / А. Г. Гуревич. — М.: Наука, 1973. — 591 с.
14. Смокотин, Э. М. Температурная зависимость магнитострикции простых ферритов [Текст] / Э. М. Смокотин, Э. В. Рубальская и др. // Изв. АН СССР. Физика. — 1970. — Т. 34, № 5. — С. 1064–1066.
15. Хирт, Дж. Теория дислокаций [Текст] / Дж. Хирт, И. Лотте. — М.: Атомиздат, 1972. — 599 с.
16. Концевой, Ю. А. Пластичность и прочность полупроводниковых материалов и структур [Текст] / Ю. А. Концевой, Ю. М. Литвинов, Э. А. Фаттахов. — М.: Радио и связь, 1982. — 240 с.
17. Саланский, Н. М. Физические свойства и применение плёнок [Текст] / Н. М. Саланский, М. М. Ерухимов. — Новосибирск: Наука, 1975. — 210 с.
18. Дикштейн, И. Е. О магнитной анизотропии ферромагнитных кристаллов с дислокациями [Текст] / И. Е. Дикштейн, В. В. Тарасенко // ФММ. — 1976. — Т. 42, Вып. 4. — С. 679–683.
19. Кирсанов, Г. Г. Эффективная магнитная анизотропия дисперсионных тонких магнитных плёнок [Текст] / Г. Г. Кирсанов, Д. И. Семенов, В. В. Сидоренков // ФММ. — 1986. — Т. 61, № 5. — С. 1036–1038.

Самарский государственный технический университет, г. Самара
gregori2000@mail.ru

Поступила 13.11.2007
В окончательном варианте
03.02.2008

L. A. Mitlina, A. A. Sidorov, G. S. Badrtdinov

IMPERFECTION OF STRUCTURE, MAGNETIC AND OHF PROPERTIES OF MONOCRYSTAL FILMS MANGANOUS FERROSPINEL

Influence of degree of structure deficiency on parameters of a ferromagnetic resonance and magnetic anisotropy of monocrystal films of ferromagnetic spinel has been considered. The elastic stress and the uniaxial anisotropy characteristics were approximated. The satisfactory consent of calculation of a constant uniaxial anisotropy is received by a method of the magnetic torque curve and a method of a ferromagnetic resonance.

Samara State Technical University, Samara, Russia
gregori2000@mail.ru

Received 13.11.2007