

УДК 539.216.2:621.318.1

©1993

**МАГНИТОСТАТИЧЕСКИЕ ВОЛНЫ,
СПИН-ВОЛНОВОЙ РЕЗОНАНС
И МЕХАНИЗМ ОБРАЗОВАНИЯ НЕОДНОРОДНОСТИ
МАГНИТНЫХ ПАРАМЕТРОВ
В ГРАНАТОВЫХ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНКАХ
С ИЗМЕНЕНИЕМ СОСТАВА ПО ТОЛЩИНЕ**

Л.В.Луцев, В.О.Шербакова, Г.Я.Федорова

Экспериментально подтверждены уменьшение групповой скорости первой моды прямой объемной и поверхностной магнитостатических волн при малых волновых векторах и образование максимума при отличном от нуля волновом векторе в пленках с линейным профилем по толщине разности намагниченности и одноосной анизотропии. Получено экспериментальное подтверждение увеличения расстояния между пиками спин-волнового резонанса с ростом градиента намагниченности и анизотропии в интервале, определяемом частотами ФМР крайних слоев. Найдено, что неоднородность магнитных параметров для пленок YIG:Ga определяется ростовой анизотропией ионов Pb^{2+} , а для пленок YIG:Ga, La — ростовой анизотропией от ионов Pb^{2+} и анизотропией напряжений. Обнаружено, что при $T = 1050^\circ\text{C}$ одновременно с исчезновением ростовой анизотропии происходит структурная перестройка, зависящая от количества Ga и La.

Наличие неоднородности магнитных параметров в ферромагнитной пленочной структуре приводит к существованию ряда новых физических эффектов и особенностей, представляющих как теоретический, так и практический интерес. Неоднородность по профилю в Bi-содержащих гранатовых пленках дала возможность существования новых типов доменных структур — бистабильных доменов [1,2]. Длинноволновые спиновые возбуждения — магнитостатические волны (МСВ), распространяющиеся в пленке с градиентом намагниченности и одноосной анизотропии $4\pi M - H_A$ по толщине, — имеют характерную особенность: максимум групповой скорости при отличном от нуля волновом векторе [3]. Из-за наличия слоя, для которого выполняются условия ферромагнитного резонанса (ФМР), возбуждение спин-волнового резонанса (СВР) в неоднородных по толщине структурах осуществляется значительно легче, чем в однородных пленках. При этом распределение пиков СВР отличается от квадратичного [4,5]. Порог возникновения нелинейных эффектов в неоднородных по толщине пленочных структурах, в частности автомодуляции спин-волновых возбуждений в пленках с линейным профилем $4\pi M - H_A$, на два порядка меньше, чем в однородных пленках [6]. Пленки с неоднородностью магнитных параметров по толщине (имплантированные пленки) использовались для возбуждения обменных спиновых волн,

имеющих значительно меньшую длину волны по сравнению с МСВ и распространяющихся от имплантированного слоя до подложки с очень малыми потерями [7,8]. Высокая эффективность возбуждения обменных спиновых волн дает возможность создания нового класса функциональных СВЧ устройств.

Настоящая работа посвящена дальнейшему изучению свойств МСВ и СВР в неоднородных по толщине пленках — экспериментальной проверке и уточнению полученных в [3–5] полевых зависимостей распределений пиков СВР и зависимостей групповых скоростей МСВ от волнового вектора. Для выяснения причины неоднородности магнитных параметров по толщине были определены изменения состава и постоянной решетки по профилю пленки, проведены отжиг и послойное травление.

1. Магнитостатические волны

Распространение МСВ исследовалось в пленках с линейными (YIG:Ga) и нелинейными (YIG:Ga, La; YIG:La) профилями разности намагниченности и одноосной анизотропии $4\pi M - H_A$. Одноосная анизотропия имела вид $H_A = \beta(Mn)n$ с осью $n \parallel Oz$, перпендикулярной поверхности пленки [9]. Причиной использования разности $4\pi M - H_A$ является то, что размагничивающий фактор $4\pi \hat{N}M$ и одноосная анизотропия $\beta(Mn)n$ преобразуются по одному тензорному представлению группы вращения, в силу чего в первом приближении они не разделяются в формулах, описывающих положение и изменение частот ФМР, СВР и МСВ при малых волновых векторах.

В табл. 1 приведены максимальные по профилю пленки значения $4\pi M - H_A$, разность максимальных и минимальных значений $\Delta(4\pi M - H_A)$ для пленок № 3–8, разность максимальных и поверхностных значений $\Delta(4\pi M - H_A) = \max(4\pi M - H_A) - (4\pi M - H_A)|_S$ для пленок № 1, 2, 9 и толщины пленок h . Пленки № 1, 2 YIG:Ga, La и № 9 YIG:La имели нелинейный

Таблица 1
Параметры пленок с изменением $4\pi M - H_A$ по толщине

Номер пленки	$\max(4\pi M - H_A), \text{Э}$	$h, \text{мкм}$	$\Delta(4\pi M - H_A), \text{Э}$	$\nu, \text{Э/мкм}$	Характер профиля $4\pi M - H_A$	Состав пленки
1	667	7.2	79	—	Максимум в середине	YIG:Ga, La
2	990	5.9	41.6	—	То же	YIG:Ga, La
3	1439	7.8	136	17.4	Линейный	YIG:Ga
4	1424	8.5	174	20.5	—	YIG:Ga
5	1408	3.8	234	61.6	—	YIG:Ga
6	1685	9.9	48	4.8	—	YIG:Ga
7	1670	8.2	60	7.3	—	YIG:Ga
8	1728	13.4	134	10.0	—	YIG:Ga
9	1915	5.07	70	—	Максимум в середине	YIG:La

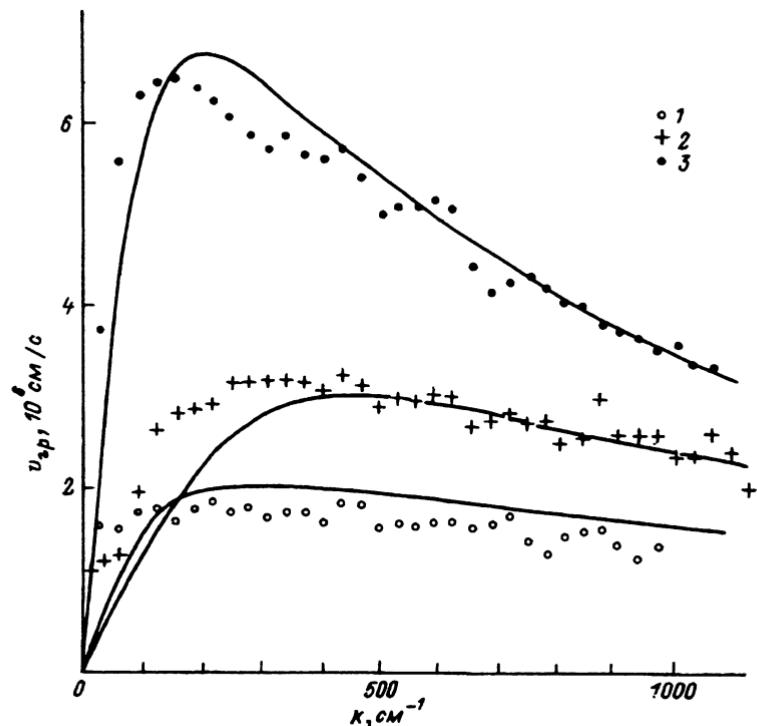


Рис. 1. Зависимости групповой скорости первой моды прямой объемной МСВ от волнового вектора для пленок № 2 (1), № 4 (2), № 8 (3).

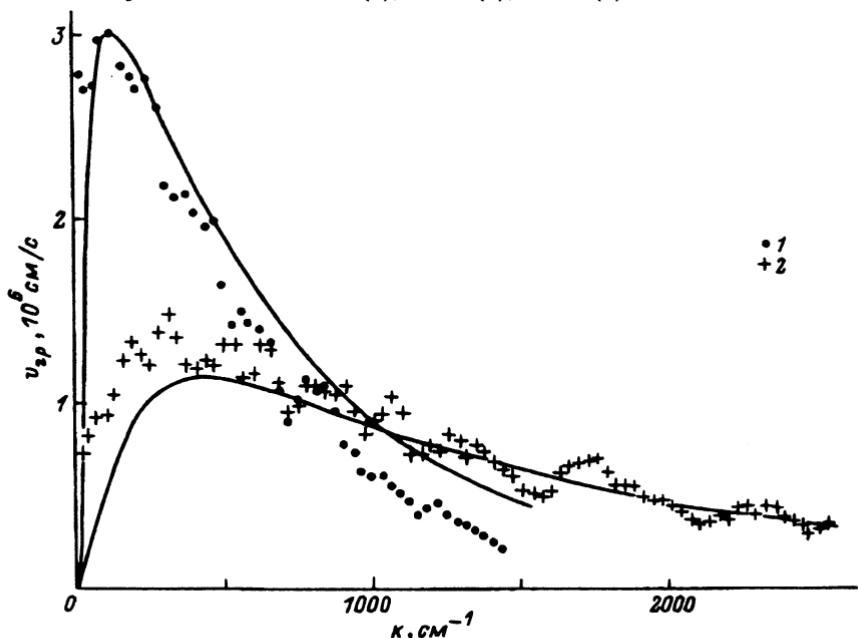


Рис. 2. Зависимости групповой скорости поверхностной МСВ от волнового вектора для пленок № 3 (1) и № 5 (2).

профиль — максимум $4\pi M - H_A$ в середине (рис. 4). Для линейных профилей определялся градиент $\nu = \partial(4\pi M - H_A)/\partial z$.

Групповые скорости v_{gp} прямой объемной МСВ (рис. 1) и поверхностной МСВ (рис. 2) измерялись на линии задержки с расстоянием между приемной и передающей антеннами 5 мм. Толщина антенн 20 мкм. Подмагничивающее поле подбиралось таким образом, чтобы соответствующие дисперсионные кривые начинались с 4.5 ГГц. Особенностью зависимостей групповых скоростей МСВ, распространяющихся в пленках с изменением $4\pi M - H_A$ по толщине, является уменьшение v_{gp} при малых k (критерий малости будет определен ниже) и наличие максимума при отличном от нуля волновом векторе k , который смещается в сторону больших значений при увеличении ν для случая линейных профилей $4\pi M - H_A$. Теоретические зависимости на рис. 1,2 построены по формулам [3].

Для пленок с линейными профилями или в более общем случае для пленок, имеющих несколько невырожденных локальных экстремумов $4\pi M - H_A$ по профилю, теоретические зависимости групповых скоростей первой моды объемной и поверхностной МСВ при $k \rightarrow 0$ уменьшаются до нуля (для экспериментальных значений наблюдается лишь уменьшение до величин, не равных нулю) и не стремятся к некоторым положительным постоянным значениям, что ошибочно отражено на графиках в [3] и связано с ростом погрешности при расчетах из-за наличия сингулярности при малых k . Эффект уменьшения v_{gp} можно доказать точно.

В перпендикулярно намагниченной неоднородной по толщине пленке в безобменном приближении прямая объемная волна описывается уравнением [9]

$$\frac{d^2\varphi}{dz^2} - k^2 \left[1 + \frac{4\pi\gamma(z)M(z)\Omega(z)}{\Omega(z)^2 - \omega^2} \right] \varphi = 0, \quad (1)$$

где φ — магнитостатический потенциал,

$$\Omega(z) = \gamma(z)[H - 4\pi M(z) + H_A(z)]$$

— частота ФМР слоя z . Допустим, что зависимость $\Omega(z)$ имеет только один абсолютный максимум в точке z_0 . При $k \rightarrow 0$

$$\omega \rightarrow \Omega_0 = \Omega(z_0) = \max \Omega(z).$$

Разлагая $\Omega(z)$ в окрестности z_0

$$\Omega(z) = \Omega_0 - \kappa_n |z - z_0|^n - \dots, \quad (n \neq \infty),$$

учитывая, что при $k \rightarrow 0$

$$\omega - \Omega_0 = v_{gp}(k)k + o(k)$$

и делая замену переменной $|z - z_0| = \xi k^{1/n}$, получаем при малых k при сохранении главных членов

$$\frac{d^2\varphi}{d\xi^2} - k^{1+2/n} \left[k - \frac{2\pi\gamma(z_0)M(z_0)}{v_{gp}(k) + \kappa_n |\xi|^n} \right] \varphi = 0. \quad (2)$$

Из вида (2) следует, что $\varphi(\xi) \neq 0$ только в том случае, если при $\xi = 0$ член перед φ имеет особенность при аналитическом продолжении — переходит в δ -функцию при $k \rightarrow 0$. Это возможно, только если $v_{\text{гр}}(k) \sim k^m$ ($m > 1 + 2/n$) при малых k .

Аналогичный вывод можно провести для случая нескольких абсолютных максимумов $\Omega(z)$ и для поверхностной волны. Он неверен для однородных структур, поскольку требование конечности n является существенным.

Эффект уменьшения групповой скорости допускает непосредственное физическое объяснение. Действительно, в (1) $\chi(z) = \gamma(z)M(z)\Omega(z)/(\Omega(z)^2 - \omega^2)$ — поперечная компонента тензора магнитной восприимчивости. При $\omega \rightarrow \Omega(z_0)$ значение χ в окрестности z_0 растет быстрее, чем в других точках, и свойства МСВ определяются все более тонким слоем толщиной Δ около точки z_0 . Происходит локализация МСВ в слое z_0 . Аппроксимируя неоднородную пленку однородным слоем толщиной Δ и зная групповую скорость прямой объемной волны в однородной пленке в длинноволновом приближении, получаем

$$v_{\text{гр}} = \pi\gamma(z_0)M(z_0)\Delta.$$

В предельном случае при $\omega \rightarrow \Omega(z_0)$

$$k^2\chi(z) \rightarrow \text{const}\delta(z), \quad \Delta \rightarrow 0.$$

Если допустить, что толщина слоя z_0 $\Delta = \Delta_1 + \Delta_2$ определяется половинным изменением $\chi(z_0 + \Delta_1) = \chi(z_0 - \Delta_2) = 1/2\chi(z_0)$, при $\Delta = h$ получаем оценку положения q максимума групповой скорости прямой объемной волны $v_{\text{гр}}q = \nu_n h^n$

$$q = \frac{\nu_n h^{n-1}}{\pi\gamma(z_0)M(z_0)} = \frac{\nu_n h^{n-1}}{\pi M(z_0)}, \quad (3)$$

где ν_n — первый, не равный нулю член разложения в окрестности минимума

$$4\pi M(z) - H_A(z) = 4\pi M(z_0) - H_A(z_0) + \nu_n|z - z_0|^n + \dots$$

Аналогичное рассмотрение для поверхностной волны при учете длинноволнового приближения

$$v_{\text{гр}} = \gamma^2\pi M(4\pi M - H_A)\Delta/\Omega, \quad \Omega = \gamma[H(H + 4\pi M - H_A)]^{1/2}$$

дает оценку положения q максимума поверхностной волны

$$q = \frac{2H\nu_n h^{n-1}}{4\pi M(z_0)(4\pi M(z_0) - H_A(z_0))}, \quad (4)$$

где ν_n — первый, не равный нулю член разложения $4\pi M(z) - H_A(z)$ в окрестности максимума. Критерием малости в (1), (2) будет являться условие $k \ll q$.

Положения максимумов $v_{\text{гр}}$ для пленок с линейным профилем ($n = 1$) с различными значениями ν и $4\pi M - H_A$ на рис. 1,2 соответствуют значениям q , определяемым (3) и (4). Хотя из-за затухания волны и конечности расстояния между антеннами при экспериментальных условиях работы

для обеспечения режима бегущих волн $v_{\text{гр}}$ имеет конечное, отличное от нуля значение, на рис. 1,2 виден эффект уменьшения групповой скорости, связанный с локализацией МСВ в слое, имеющем максимальную частоту ФМР $\Omega(z)$. Особенно этот эффект заметен для прямой объемной волны. Наблюдающиеся периодические изменения групповой скорости МСВ (кривые 1, 2 на рис. 1; кривая 2 на рис. 2), по-видимому, обусловлены взаимодействием первой моды прямой объемной и поверхностью волны с высшими модами в районе пересечения их дисперсионных кривых с соответствующим расталкиванием кривых и уменьшением групповой скорости. В пользу этого говорит увеличение ширины обменных щелей, а следовательно, и более сильное расталкивание дисперсионных кривых мод МСВ в неоднородных пленочных структурах по сравнению с однородными пленками.

2. Спин-волновой резонанс

В [4] получены соотношения, определяющие положения пиков СВР в неоднородной по толщине пленке в первом квазиклассическом приближении. Ограничивааясь главным членом, для перпендикулярно намагниченной пленочной структуры имеем

$$\int_{a_1}^{a_2} \sqrt{\frac{|U(z)|}{\alpha(z)}} dz = \pi(n - 1/2), \quad (n = 1, 2, 3, \dots), \quad (5)$$

где

$$U(z) = (\Omega(z) - \omega)/\gamma(z)4\pi M(z),$$

$\alpha(z)$ — постоянная обменного взаимодействия; a_1, a_2 — точки поворота ($U(a_{1,2}) = 0$) или граница пленки.

Для пленки с линейным изменением $4\pi M - H_A$ по толщине при $\gamma(z) = \text{const}$, $\alpha(z) = \text{const}$ в области частот, ограниченной минимальной и максимальной частотами ФМР слоев, из (5) получается упрощенная формула, описывающая распределение пиков СВР

$$\omega_n = \min \Omega(z) + [8\pi^3 \gamma^3 \nu^2 \alpha M_0 (n - 1/2)^2]^{1/3},$$

$$(\omega_n \in [\min \Omega(z), \max \Omega(z)]), \quad (6)$$

где ν — градиент $4\pi M - H_A$ по толщине, n — номер пика.

При выводе подынтегральное выражение в (5) заменено на усредненное значение с $4\pi M - H_A$ среднего слоя, лежащего посередине между слоями a_1 и a_2 . Как видно из (6), в области $[\min \Omega(z), \max \Omega(z)]$ расстояние между пиками в первом приближении определяется изменением $4\pi M - H_A$. Второй член в разложении (5), уточняющий (6), учитывает уже раздельно неоднородности $4\pi M(z)$ и $H_A(z)$. Более простой вывод формулы (6) приведен в [5].

При экспериментальных исследованиях развертка осуществлялась изменением величины магнитного поля H при постоянной частоте. Поэтому (6) в полевых переменных будет иметь вид

$$H_n = H_1 - [8\pi^3 \nu^2 \alpha M_0 (n - 1/2)^2]^{1/3}. \quad (7)$$

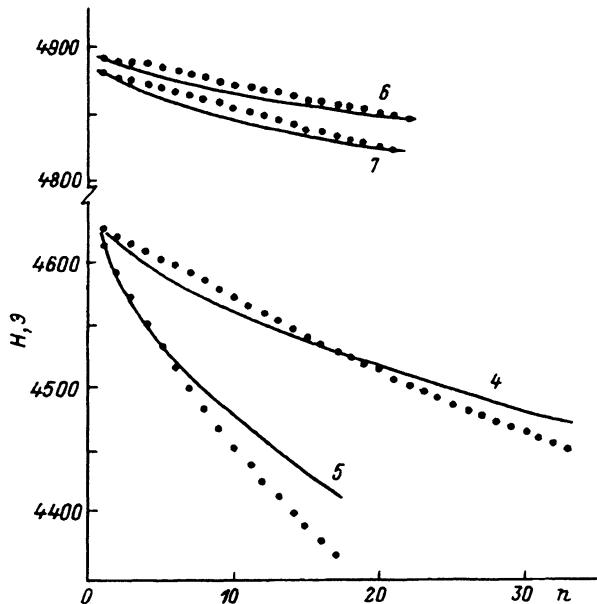


Рис. 3. Зависимости положений пиков СВР от номера для перпендикулярно намагниченных пленок № 4-7 в диапазоне полей, определяемом диапазоном частот ФМР [min $\Omega(z)$, max $\Omega(z)$] при $\omega/2\pi = 9.140$ ГГц.

Сплошные кривые — теоретические зависимости, построенные по формуле (7).

Измерения проводились на установке ФМР на частоте 9.140 ГГц на перпендикулярно намагниченных образцах квадратной формы. Постоянная α полагалась равной $3.2 \cdot 10^{-12}$ см². Теоретические зависимости и экспериментальные значения положений пиков СВР от номера n для пленок с линейным профилем $4\pi M - H_A$ представлены на рис. 3. С увеличением n расстояние между пиками растет.

3. Структура одноосной анизотропии

Для выяснения природы изменения $4\pi M - H_A$ необходимо рассмотреть структуру одноосной анизотропии H_A . Плотность энергии одноосной анизотропии w_u в пленке складывается из плотности энергий стрессовой (анизотропии напряжений) w_{us} и ростовой w_{ug} анизотропий

$$w_u = \frac{1}{2} H_A M = w_{us} + w_{ug}. \quad (8)$$

Стressовая анизотропия определяется формулой [10]

$$w_{us} = -\frac{3}{2} \lambda_{111} \sigma = -\frac{3Y\lambda_{111}}{2(1+\mu)} \frac{\Delta a_{\perp}}{a}, \quad (9)$$

где σ — растягивающее напряжение, направленное по вектору намагниченности; Y — модуль Юнга; μ — коэффициент Пуассона; λ_{111} — коэффициент магнитострикции по направлению [111]; $\Delta a_{\perp}/a$ — относительное изменение постоянной решетки.

Ростовую анизотропию в гранатовых эпитаксиальных структурах, возникающую из-за нестатического упорядочивания ионов при росте, можно разбить на три компоненты: а) анизотропия от ионов со спин-орбитальной связью и орбитальным моментом, не равным нулю; б) анизотропия от диамагнитных ионов; в) анизотропия, происходящая от увеличения спин-орбитального взаимодействия и сверхобменного взаимодействия между Fe^{3+} .

а) Ростовая анизотропия от ионов со спин-орбитальной связью и орбитальным моментом, не равным нулю, например от редкоземельных ионов в с-позициях в зависимости от параметров вхождения и ионных радиусов, описана в [11].

б) Ростовая анизотропия от диамагнитных ионов (например, от Y^{3+} , Lu^{3+} , La^{3+} в додекаэдрических (с) позициях в $\{\text{R}_{x_1}^{(1)} \dots \text{R}_{x_n}^{(n)}\} \text{Fe}_5\text{O}_{12}$, $x_1 + \dots + x_n = 3$) возникает от искажений тетраэдрического (*d*) и октаэдрического (*a*) окружений Fe^{3+} вблизи пары разнородных ионов в с-позициях. Она пропорциональна добавке к основному состоянию $\text{Fe}^{3+} {}^6S_{5/2}$ возбужденных состояний с отличным от нуля орбитальным моментом. Поскольку вероятность присутствия в определенной точке пары разнородных ионов в с-позициях пропорциональна $(x_i/3)(x_j/3)$ и в свою очередь искажения решетки пропорциональны разности ионных радиусов Δr_{ij} , ростовая анизотропия описывается формулой

$$w_{ug}^{\text{diam}} = \sum_{i < j}^n P \Delta r_{ij} x_i x_j. \quad (10)$$

Если в с-позициях присутствуют ионы с зарядами, отличными от 3+, например в соединении $\{\text{R}_{x_1}^{(1)3+} \dots \text{R}_{x_n}^{(n)3+} \text{R}_y^{(a)4+} \text{R}_y^{(b)2+}\} \text{Fe}_5\text{O}_{12}$, вероятность присутствия около иона $\text{R}^{(a)4+}$ иона $\text{R}^{(b)2+}$ в силу зарядовой компенсации равна 1, а вероятность обнаружения одного иона из пары ($\text{R}^{(a)4+}$, $\text{R}^{(b)2+}$) в с-позиции равна $2y/3$. Поэтому (10) должна быть изменена

$$w_{ug}^{\text{diam}} = \sum_{i < j}^n P \Delta r_{ij} x_i x_j + 2 \sum_i^n P \Delta r_{iab} x_i y + 6 P \Delta r_{aby}, \quad (11)$$

где

$$\Delta r_{iab} = |r_i - 1/2(r_a + r_b)|.$$

Коэффициент P может быть определен из экспериментальных данных. Например, из величины ростовой анизотропии $\{\text{Lu}, \text{Y}\} \text{Fe}_5\text{O}_{12}$ [12] при $r(\text{Lu}^{3+}) = 0.99 \text{ \AA}$, $r(\text{Y}^{3+}) = 1.06 \text{ \AA}$ [13] получаем $P = 2.9 \cdot 10^4 \text{ эрг}/\text{см}^3 \cdot \text{\AA}$ (анизотропия типа «легкая ось»).

в) Особый вид ростовой анизотропии возникает, когда в гранатовой матрице присутствуют ионы Bi^{3+} и Pb^{2+} . Благодаря смешиванию 6 p -электронов этих ионов с 2 p -электронами O^{2-} усиливается сверхобменное взаимодействие между Fe^{3+} и увеличивается спин-орбитальное взаимодействие, что приводит к усилению эффекта Фарадея и росту одноосной анизотропии [14–18]. Для соединений

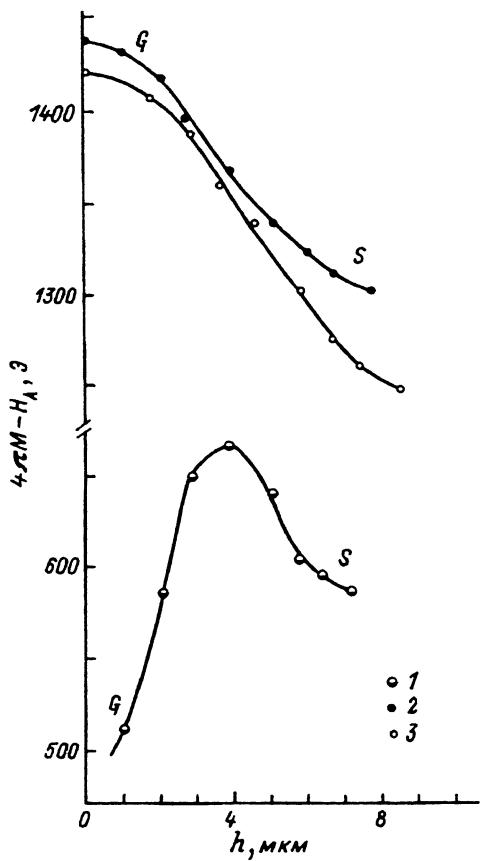


Рис. 4. Профиль $4\pi M - H_A$ от подложки G до поверхности S для пленок № 1 (1), № 3 (2), № 4 (3).

$\{R_xM_{3-x}\}[A_yFe_{2-y}](B_zFe_{3-z})O_{12}$, где $R = (Bi^{3+}, Pb^{2+})$, M , A , B — диамагнитные ионы, вклад в ростовую анизотропию, обусловленный усилением спин-орбитального взаимодействия, пропорционален количеству связей между ионами Fe^{3+} в a - и d -позициях и количеству ионов R и дается формулой

$$w_{ug}^{so} = Qx(2-y)(3-z). \quad (12)$$

Из экспериментальных данных [17] при учете одинаковой электронной конфигурации для Bi^{3+} и Pb^{2+} получаем в YIG:Bi и YIG:Pb значение $Q = 1.79 \cdot 10^5$ эрг/см³ (анизотропия типа «легкая ось»). Величина w_{ug}^{so} значительно больше диамагнитного вклада (10) и приближается к ростовой анизотропии в гранатах с редкоземельными ионами.

4. Механизм образования неоднородности $4\pi M - H_A$

Изменение $4\pi M - H_A$ по профилю пленки определялось с помощью послойного стравливания с последующим снятием спектров СВР на установке ФМР на частоте 9.140 ГГц. Профиль разности намагниченности и анизотропии $4\pi M - H_A$ для пленок № 1, 3, 4 представлен на рис. 4. Неоднородность $4\pi M - H_A$ в пленках № 1–4,

6-9 получена при охлаждении расплава в процессе роста. Исследуемые пленки, выращенные на подложках GGG(111), имели состав $\{Y^{3+}_{3-x} La^{3+}_{x_1} Pb^{2+}_{x_2} Pb^{4+}_{x_3}\}[Y^{3+}_{y_1} Pb^{4+}_{y_2} Pt^{4+}_{y_3} Ga^{3+}_{y_4} Fe^{3+}_{2-y}](Ga^{3+}_z Fe^{3+}_{3-z})O_{12}$ ($x = x_1 + x_2 + x_3$, $y = y_1 + y_2 + y_3 + y_4$). В формуле граната учитывались вхождение Y в октаэдрические положения [19,20], механизм автокомпенсации, связанный с ионами Pb^{2+} , Pb^{4+} [18], и вхождение Pb^{4+} не только в октаэдрические, но и в додекаэдрические позиции. Изменения состава определялись с помощью микрорентгеноспектрального анализа при сканировании электронного пучка по косому шлифу пленки. Наиболее значительными были увеличения от подложки к поверхности La и Pb (рис. 5, табл. 2). Наблюдались незначительные уменьшения к поверхности Ga (табл. 2) и Y (пленка № 1 — 8.2%, пленки № 3, 4 — 4.3%). Изменений Pt и Fe в пределах погрешности измерения обнаружено не было. Из условия компенсации зарядов Pb^{4+} , Pt^{4+} и Pb^{2+} $x_2 = x_3 + y_2 + y_3$ определены коэффициенты вхождения Pb^{4+} и Pb^{2+} (табл. 2). Количество ионов Ga^{3+} в октаэдрических позициях y_4 найдено из уравнения [21]

$$\frac{(u - y_4)(2 - y_4)}{y_4(3 - u + y_4)} = \exp \frac{E_0}{kT}, \quad (13)$$

где $E_0 = 0.242$ эВ — разность химических потенциалов при распределении Fe^{3+} и Ga^{3+} между октаэдрическими и тетраэдрическими позициями, T — равновесная температура, $u = y_4 + z$. Зная изменения температуры во время роста, учитывая быструю скорость охлаждения после ро-

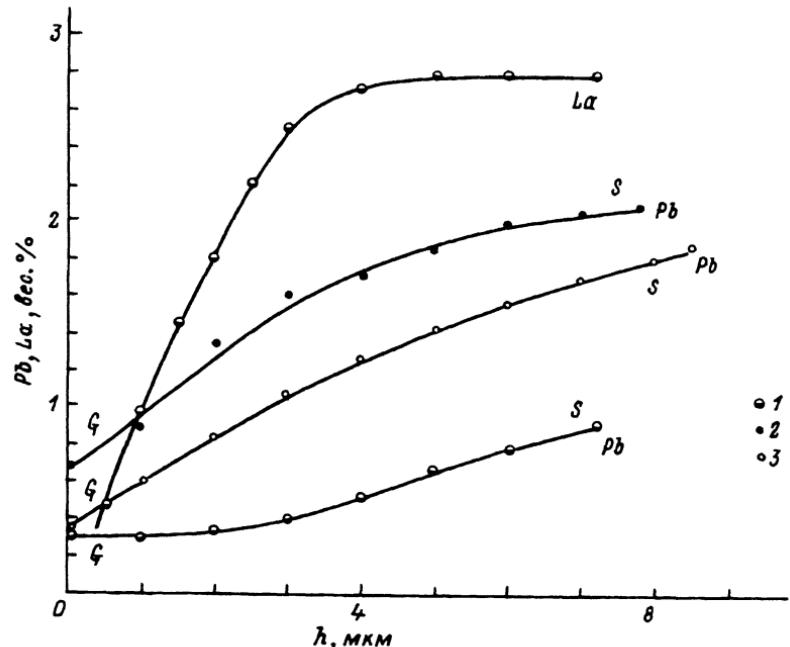


Рис. 5. Распределение La и Pb по профилю от подложки G до поверхности S для пленок № 1 (1), № 3 (2), № 4 (3).

Таблица 2

Изменение свойств и состава пленок и влияние отжига

Номер пленки	Свойства и состав пленки около подложки										после отжига			
	La ³⁺ , x_1	Pb ²⁺ , x_2	Pb ⁴⁺ , $x_3 + y_2$	Pt ⁴⁺ , y_3	Ga _{a+d} ³⁺ , $y_4 + z$	Гa _a ³⁺ , y_4	до отжига		4πM-H _A , Э	Δa _⊥ , Å	4πM-H _A , Э	Δa _⊥ , Å	H _{u,s} , Э	
4	0	0.0115	0	0.019	0.22	0.0135	1424	-0.0048	33	1396	-0.0048	33		
3	0	0.0215	0.0025	0.019	0.17	0.010	1439	0.0052	-39	1463	0.0006	-4.5		
1	0.02	0.010	0.001	0.009	0.65	0.048	513	-0.007	62	557	-0.0063	56		
Свойства и состав пленки около поверхности														
Номер пленки	Свойства и состав пленки около поверхности										после отжига			
	La ³⁺ , x_1	Pb ²⁺ , x_2	Pb ⁴⁺ , $x_3 + y_2$	Pt ⁴⁺ , y_3	Ga _{a+d} ³⁺ , $y_4 + z$	Гa _a ³⁺ , y_4	до отжига		4πM-H _A , Э	Δa _⊥ , Å	4πM-H _A , Э	Δa _⊥ , Å	H _{u,s} , Э	
4	0	0.0435	0.0245	0.019	0.20	0.0115	1250	0.0127	-94	1448	0.0016	-12		
3	0	0.0475	0.0285	0.019	0.15	0.0085	1303	0.0199	-155	1539	0.0052	-40		
1	0.15	0.021	0.012	0.009	0.62	0.044	588	0.026	-230	831	0.0227	-201		

ста и известные значения u , мы нашли количество Ga^{3+} в a -позициях y_4 (табл. 2).

По изменению постоянной решетки Δa_{\perp} относительно YIG, которое измерялось рентгенографическими методами, было оценено вхождение Y^{3+} y_1 в октаэдрические позиции. Из известной зависимости изменения Δa_{\perp} в $\text{La}_x \text{Y}_{3-x} \text{Ga}_z \text{Fe}_{5-z} \text{O}_{12}$ от x и z [22] и знания ионных радиусов [13] можно определить изменение Δa_{\perp} при замещении в $\text{R}_{x_1}^{(1)} \dots \text{R}_{x_n}^{(n)} \text{Y}_{3-x_1-\dots-x_n} \text{A}_{z_1}^{(1)} \dots \text{A}_{z_m}^{(m)} \text{Fe}_{5-z_1-\dots-z_m} \text{O}_{12}$

$$\Delta a_{\perp} = b_1 \sum_{i=1}^n \frac{r(\text{R}^{(i)}) - r(\text{Y}^{3+})}{r(\text{La}^{3+}) - r(\text{Y}^{3+})} x_i + b_2 \sum_{i=1}^m \frac{r(\text{A}^{(i)}) - r(\text{Fe}^{3+})}{r(\text{Ga}^{3+}) - r(\text{Fe}^{3+})} z_i, \quad (14)$$

где $b_1 = 0.130 \text{ \AA}$, $b_2 = -0.013 \text{ \AA}$ [22]. Неизвестное распределение Pb^{4+} между a - и c -положениями и малое количество Y^{3+} в a -позициях по сравнению с общим количеством при достаточно большой погрешности определения Y^{3+} в составе позволили получить из (14) только приближенные средние оценки нахождения Y^{3+} в a -позициях: для пленки № 4 — $y_1 = 0.05$, № 3 — 0.10, № 1 — 0.06.

Исходя из состава пленки, экспериментально полученных значений $D = 4\pi M - H_A$ и Δa_{\perp} и известных значений ионных радиусов Y^{3+} , La^{3+} , Pb^{2+} , Pb^{4+} [13], из системы уравнений (8), (9), (11), (12) мы вычислили поля стрессовой H_{us} и ростовых H_{ug}^{diam} , H_{ug}^{so} анизотропий вблизи поверхности и подложки

$$H_u^{(i)} = \frac{2w_u^{(i)}}{M} = \frac{16\pi w_u^{(i)}}{D + [D^2 + 32\pi (w_{us} + w_{ug}^{\text{diam}} + w_{ug}^{\text{so}})]^{1/2}}, \quad (15)$$

$$H_u^{(i)} = \{H_{us}, H_{ug}^{\text{diam}}, H_{ug}^{\text{so}}\}.$$

При вычислении $w_{us}(H_{us})$ были использованы значения Y , λ_{111} , μ , полученные экстраполяцией из известных значений этих величин для гранатов YIG:Ga, La с определенным уровнем замещения [23]. Значения H_{us} вблизи поверхности S и подложки G представлены в табл. 2. Экспериментально полученная разность $\Delta(4\pi M - H_A) = (4\pi M - H_A)|_G - (4\pi M - H_A)|_S$ и теоретически рассчитанные из (15) значения $\Delta H_u^{(i)} = H_u^{(i)}|_G - H_u^{(i)}|_S$ приведены в табл. 3. Здесь же даны изменения намагниченности $\Delta 4\pi M$, получившиеся от неоднородного вхождения Ga^{3+} . Для пленки № 1 в скобках указаны разности $(4\pi M - H_A)|_G - \max(4\pi M - H_A)$, $\max(4\pi M - H_A) - (4\pi M - H_A)|_S$ и вклад в $\Delta H_{ug}^{\text{diam}}$ от Y^{3+} , Pb^{2+} , Pb^{4+} (без La^{3+}). Из сравнения экспериментальных $\Delta(4\pi M - H_A)$ и теоретически рассчитанных значений

$$\Sigma = \Delta 4\pi M(\text{Ga}) + \Delta H_{us} + \Delta H_{ug}^{\text{so}} + \Delta H_{ug}^{\text{diam}}$$

видно, что величина Σ для пленок с линейным профилем (№ 3,4) меньше $\Delta(4\pi M - H_A)$ и главный вклад в Σ вносит изменение ростовой анизотропии H_{ug}^{so} от Pb^{2+} . Причиной меньших значений Σ является занижение

Вклад намагниченности, ростовой и стрессовой анизотропий
в изменение $4\pi M - H_A$ пленки по толщине (в эрстедах)

Номер пленки	$\Delta(4\pi M - H_A)$	Из данных по отжигу δH_{ug}	$\Delta 4\pi M$ Ga	ΔH_{us}	ΔH_{ug}^{so}	$\Delta H_{ug}^{\text{дiam}}$	δH_{ug}	
	эксп.				теор.			
4	174	308	-26	-127	171	41	212	
3	136	292	-27	-116	159	40	199	
1	-75 (-154 + 79)	234	-36	-292	118	115 (36)	154	

коэффициента Q в (12), что подтверждается ниже данными по отжигу. Для пленки № 1 YIG:Ga, La увеличение $4\pi M - H_A$ на участке подложка — середина пленки (рис. 4) происходит благодаря изменению стрессовой анизотропии, причиной которой является более интенсивное вхождение La по сравнению с Pb (рис. 5). Спад $4\pi M - H_A$ для этой пленки в области середина пленки — поверхность объясняется изменением ростовой анизотропии H_{ug}^{so} от большего вхождения Pb. Из сравнения коэффициентов вхождения Pb для пленок № 1, 3, 4 (рис. 5) видно, что ионы La «блокируют» вхождение Pb в YIG. Аналогичный эффект «блокирования» вхождения Pb висмутом, полученный на однородных пленках при разных условиях роста, наблюдался в [14].

Необходимо также отметить, что вклад в изменение $4\pi M - H_A$ вносят также ионы Y^{3+} в a -позициях через изменение $\Delta 4\pi M$. Приближенные оценки по формуле (14) показывают, что этот вклад противоположен и в 1.5 раза больше $\Delta 4\pi M$ от ионов Ga^{3+} .

Для проверки того, что основной составляющей частью неоднородности $4\pi M - H_A$ является изменение по толщине пленки ростовой анизотропии H_{ug}^{so} от Pb^{2+} , был произведен отжиг. При отжиге происходит переход

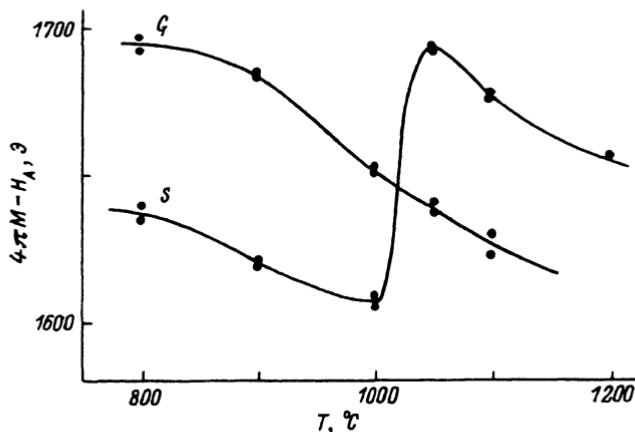


Рис. 6. Изменение $4\pi M - H_A$ в зависимости от температуры отжига для пленки № 6.

G, S — области пленки около подложки и поверхности.

α

72.3744

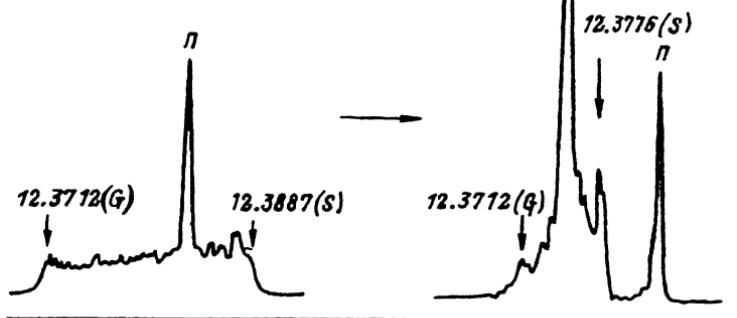
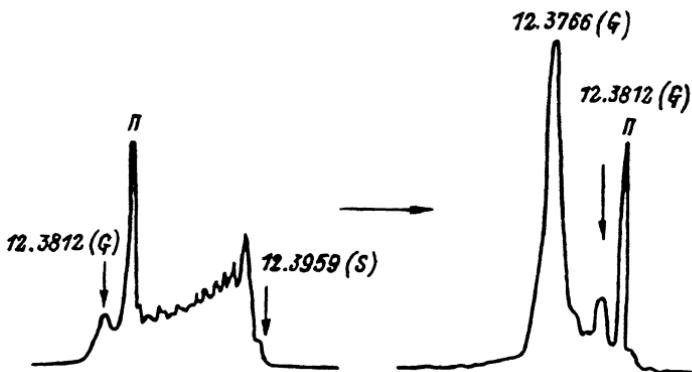
 β 

Рис. 7. Изменения рентгеновских дифракционных спектров при отжиге, показывающие различные степени структурной перестройки в зависимости от содержания Ga ($u = y_4 + z$) и La (x_1) для пленок

N^o 4 ($u = 0.20 \div 0.22$, $x_1 = 0$) (а),

N^o 3 ($u = 0.15 \div 0.17$, $x_1 = 0$) (б),

N^o 1 ($u = 0.62 \div 0.65$, $x_1 = 0.02 \div 0.15$) (в),

N^o 9 ($u = 0$, $x_1 = 0.10 \div 0.28$) (г).

Цифрами указаны постоянные решетки.

П — пик от подложки; G, S — области пленки около подложки и поверхности.

ионов, ответственных за ростовую анизотропию, в равновесные положения, что приводит к уничтожению этого вида анизотропии. На рис. 6 показаны изменения $4\pi M - H_A$ от температуры отжига около поверхности (S) и подложки (G) для пленки N^o 6. Длительность отжига 10 ч. Для точной идентификации кривых одновременно проводился отжиг пленки, стравленной почти до подложки ($h \sim 1$ мкм).

Из рис. 6 и табл. 2 видно, что при $T = 1050^\circ\text{C}$ происходит скачок $4\pi M - H_A$, имеющий наибольшее значение около поверхности и почти не проявляющийся или примерно на порядок имеющий меньшую величину

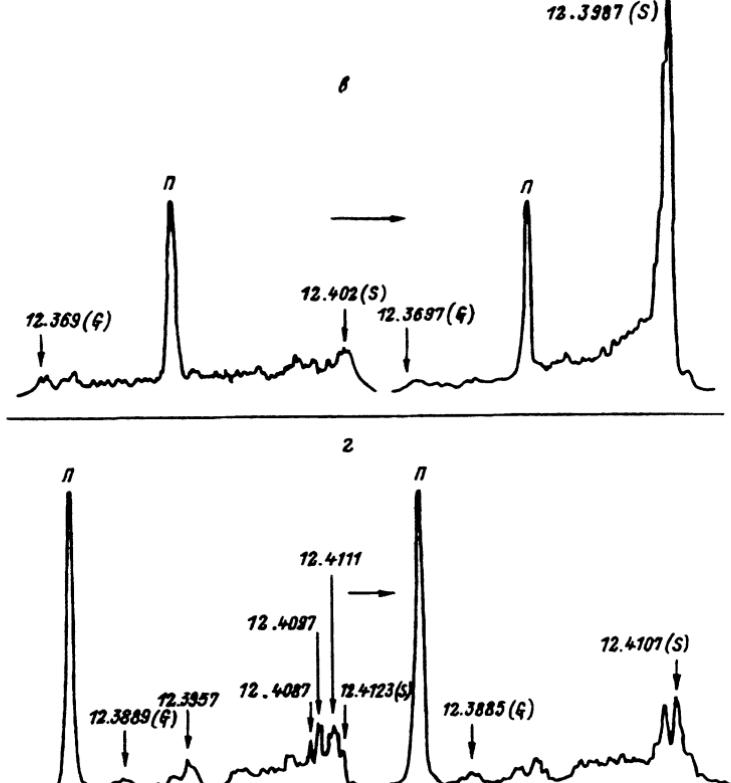


Рис. 7. (продолжение).

около подложки, что приводит к инверсии профиля $4\pi M - H_A$ по толщине пленки. Одновременно с этим происходит структурная перестройка, приводящая к уменьшению постоянной решетки и проявляющаяся в уменьшении ширины рентгеновского дифракционного спектра и его сдвиге (рис. 7). Наибольшие изменения в структуре происходят для пленок YIG:Ga. Они уменьшаются при увеличении количества La и уменьшении Ga.

Скачок $4\pi M - H_A$ при отжиге не может быть обусловлен ростовой анизотропией от ионов Ga^{3+} в *a*- и *d*-позициях, так как в противном случае при учете распределения Ga по толщине пленки это приводило бы к такому же скачку в пленке около подложки. По этой же причине и при учете малого количества ионов этот скачок не может быть обусловлен ростовой анизотропией H_{us}^{diam} от ионов Y^{3+} в октаэдрических позициях. Единственным ионом, способным объяснить скачок $4\pi M - H_A$, является Pb^{2+} . При отжиге, по-видимому, происходит разрушение пары $\text{Pb}^{2+} + \text{Pb}^{4+} + h\nu \rightarrow \text{Pb}^{3+} + \text{Pb}^{3+}(h\nu = 18\,000\,\text{см}^{-1})$ [18], что также является причиной структурной перестройки. В табл. 2 приведены величины $D = 4\pi M - H_A$, Δ_{\perp} и рассчитанные значения H_{us} до отжига при 1100°C и после. Учитывая структурную перестройку и изменение H_{us} , мы определили разность скачка ростовой анизотропии δH_{us} между областями

около поверхности (S) и подложки (G)

$$\delta H_{ug} = (D + H_{us} - D^{\text{отж}} - H_{us}^{\text{отж}})|_G - (D + H_{us} - D^{\text{отж}} - H_{us}^{\text{отж}})|_S, \quad (16)$$

где индекс «отж» указывает на значение, измеренное после отжига.

Сравнение экспериментальных δH_{ug} (16) и теоретически полученных значений (табл. 3) $\delta H_{ug} = \Delta H_{ug}^{so} + \Delta H_{ug}^{\text{diam}}$ (для пленки № 1 нужно взять $\Delta H_{ug}^{\text{diam}}$ от Y^{3+} , Pb^{2+} , Pb^{4+} без La^{3+} , так как вклад в $\Delta H_{ug}^{\text{diam}}$ от La^{3+} не уничтожается при $T_{\text{отж}} = 1100^\circ\text{C}$) показывает, что экспериментальные значения имеют большую величину. По-видимому, это связано с тем, что эффект смешивания 6 p -электронов Pb^{2+} и 2 p - O^{2-} в гранатовой матрице YIG:Ga является более сильным, чем в матрице YIG , и коэффициент Q в (12) следует увеличить. После отжига основной вклад в изменение $4\pi M - H_A$ по профилю пленки вносит изменение анизотропии напряжений.

Профиль $4\pi M - H_A$ пленки № 9 YIG:La аналогичен профилю $4\pi M - H_A$ пленки № 1 на рис. 4. Он определяется анизотропией напряжений на участке подложка—середина пленки, а в области середина пленки—поверхность — ростовой анизотропией от Pb^{2+} . При отжиге изменение профиля $4\pi M - H_A$ и структурная перестройка для пленки № 9 незначительны (рис. 7,2). Малые изменения ростовой анизотропии ($\delta H_{ug} = 29 \text{ Э}$) и спектра на рис. 7,2, по-видимому, можно объяснить почти полным отсутствием ионов Pb^{4+} , в связи с чем реакция



при отжиге не происходит и ростовая анизотропия от Pb^{2+} полностью не пропадает.

В заключение следует отметить, что дополнительная информация по входению и взаимодействию Pb в пленках с неоднородностью $4\pi M - H_A$ по толщине и разрушению пар $\text{Pb}^{2+} - \text{Pb}^{4+}$ при отжиге могла бы быть получена с помощью исследования изменений эффекта Фарадея, изучения поглощения света при $h\nu = 18000 \text{ см}^{-1}$ и с помощью рентгенофотоэлектронной спектроскопии. В последнем методе исследуются спектры $4f_{7/2}$ -фотоэлектронов, из которых выделяются две линии с $E = 139.6 \text{ эВ}$ (Pb^{2+}) и 139.0 эВ (Pb^{4+}) [24].

Авторы благодарят И.Л.Березина за выращенные гранатовые эпитаксиальные пленки и М.Н.Васильеву за проведение травления и отжига.

Список литературы

- [1] Червоненкис А.Я., Рыбак В.И. // Письма в ЖТФ. 1978. Т. 4. № 1. С. 24–28.
- [2] Аваева И.Г., Лисовский Ф.В., Мансветова Е.Г., Сальникова Е.И., Червоненкис А.Я. // ФТТ. 1979. Т. 21. № 2. С. 406–415.
- [3] Луцев Л.В. // ЖТФ. 1991. Т. 61. № 3. С. 80–87.
- [4] Луцев Л.В., Яковлев Ю.М. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 6. С. 1675–1682.
- [5] Луцев Л.В., Березин И.Л., Яковлев Ю.М. // Электронная техника. Серия 1. Электроника СВЧ. 1989. В. 5(419). С. 5–8.
- [6] Луцев Л.В., Березин И.Л. // ФТТ. 1988. Т. 30. № 9. С. 2679–2682.
- [7] Гуляев Ю.В., Зильберман П.Е., Санников Е.С., Тихонов В.В., Толкачев А.В. // Письма в ЖТФ. 1988. Т. 14. № 10. С. 884–888.
- [8] Тихонов В.В., Толкачев А.В., Остапийчук Б.К. // Письма в ЖТФ. 1991. Т. 17. № 15. С. 49–52.

- [9] Ахиезер А.И., Барьяхтар В.Г., Пелетминский С.В. Спиновые волны. М.: Наука, 1967. 368 с.
- [10] Тикадзуми С. Физика ферромагнетизма. Магнитные характеристики и практические применения. М.: Мир, 1987. 424 с.
- [11] Eschenfelder A.H. // J. Applied Physics. 1978. V. 49. N 3(II). P. 1891–1893.
- [12] Gyorgy E.M., Sturge M.D., van Uitert L.G., Heilner E.J., Grodkiewicz W.H. // J. Applied Physics. 1973. V. 44. № 1(II). P. 438–443.
- [13] Крупичка С. Физика ферритов и родственных им магнитных окислов. Т. 1. М.: Мир, 1976. 360 с.
- [14] Hansen P., Witter K., Tolksdorf W. // Physical Review B. 1983. V. 27. N 11. P. 6608–6625.
- [15] Hansen P., Tolksdorf W., Witter K., Robertson J.M. // IEEE Transactions on Magnetics. 1984. V. MAG-20. N 5. P. 1099–1104.
- [16] Hansen P., Krumme J.-P. // Thin Solid Films. 1984. V. 114. N 1/2. P. 69–107.
- [17] Luther L.C., Le Craw R.C., Ermanis F. // J. Crystal Growth. 1982. V. 58. N 1. P. 95–102.
- [18] Scott G.B., Page J.L. // J. Applied Physics. 1977. V. 48. N 3. P. 1342–1349.
- [19] Glass H.L., Elliott M.T. // J. Crystal Growth. 1974. V. 27. N 1. P. 253–260.
- [20] Robertson J.M., van Hout M.J.G., Verplanke J.C., Brice J.C. // Materials Research Bulletin. 1974. V. 9. N 5. P. 555–568.
- [21] Röschmann P. // J. Physics and Chemistry of Solids. 1980. V. 41. N 6. P. 569–581.
- [22] Glass H.L., Liaw J.H.W., Elliott M.T. // Materials Research Bulletin. 1977. V. 12. N 7. P. 735–740.
- [23] Яковлев Ю.М., Гендельев С.Ш. Монокристаллы ферритов в радиоэлектронике. М.: Сов. радио, 1975. 360 с.
- [24] Рандошкин В.В., Червоненкис А.Я. // ЖТФ. 1985. Т. 55. № 7. С. 1382–1386.

НИИ «Домен»
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию
17 ноября 1992 г.
В окончательной редакции
5 апреля 1993 г.
