

Магнитные и магнитооптические свойства тонких пленок гексаферрита ВаМ, выращенных на подложках $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ методом лазерной молекулярно-лучевой эпитаксии

© Б.Б. Кричевцов¹, А.М. Коровин¹, А.А. Левин¹, А.Г. Бадалян¹, Н.С. Соколов¹, А.В. Телегин², И.Д. Лобов²

¹ Физико-технический институт им. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

² Институт физики металлов им. М.Н. Михеева, Екатеринбург, Россия

E-mail: boris@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 11 мая 2023 г.

В окончательной редакции 22 августа 2023 г.

Принята к публикации 30 октября 2023 г.

Приводятся результаты исследования структурных, магнитных и магнитооптических свойств тонких (толщиной $h = 50\text{--}500\text{ nm}$) пленок гексаферрита ВаМ ($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$), выращенных на подложках сапфира $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ методом лазерной молекулярно-лучевой эпитаксии. Кристаллическая структура выращенных слоев изучалась рентгенодифракционными методами, а статические магнитные свойства с помощью вибрационного магнитометра. Получены спектральные зависимости полярного магнитооптического эффекта Керра (РМОКЕ), поперечного эффекта Керра (ТКЕ) и магниторефрактивного эффекта (MRE^S).

Ключевые слова: гексаферриты, тонкие пленки, процессы намагничивания, лазерная молекулярно-лучевая эпитаксия.

DOI: 10.61011/FTT.2023.12.56731.4992k

Гексаферриты образуют большой класс ферромагнитных материалов, обладающих разнообразными, часто уникальными, магнитными свойствами, благодаря которым они нашли широкое применение для создания различных устройств передачи и обработки информации с помощью магнитостатических волн, создания постоянных магнитов, датчиков магнитного поля и т.п. [1]. Наличие в кристаллической структуре оси симметрии 6-го порядка обуславливает появление, в зависимости от химического состава и типа кристаллической структуры, магнитной анизотропии типа „легкая ось“ (ось легкого намагничивания), либо „легкая плоскость“ (плоскость легкого намагничивания). Гексаферрит ВаМ ($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$) обладает высокими значениями намагниченности насыщения ($4\pi M_s \approx 4.7\text{ kG}$) и поля одноосной анизотропии ($H_a \approx 17\text{ kOe}$), стремящейся ориентировать намагниченность вдоль оси шестого порядка. Это делает его перспективным материалом для создания тонкопленочных структур, в которых намагниченность может ориентироваться нормально плоскости без приложения магнитного поля. Частота ферромагнитного резонанса (FMR, ferromagnetic resonance) тонкопленочных структур на основе гексаферрита $F \sim 50\text{ GHz}$ [2].

Пленки гексаферрита выращивались методом лазерной молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$. Как показали наши исследования с помощью методов дифракции быстрых электронов (RHEED, reflection high-energy electron diffraction) и полярного магнитооптического эффекта Керра (РМОКЕ, polar magneto-optical effect), кристаллическая структура гексаферрита и ферромагнитные свойства таких пленок про-

являются после их отжига на воздухе при температуре 1000°C . Для получения информации о влиянии отжига на кристаллическую структуру пленок и их магнитные характеристики в данной работе были проведены исследования пленок ВаМ с помощью рентгенодифракционных (XRD, X-ray diffraction), магнитометрических и магнитооптических методов.

XRD-измерения проводились на порошковом рентгеновском дифрактометре D2 Phaser (Bruker AXS, Карлсруэ, Германия), в вертикальной $\theta\text{--}\theta$ геометрии Брэгга–Брентано, снабженном линейным полупроводниковым позиционно-чувствительным детектором LYNXEYE (Bruker AXS). Использовалось $\text{Cu-K}\alpha$ -излучение (длина волны $\lambda = 1.5418\text{ \AA}$) рентгеновской трубки с медным анодом, отфильтрованное фильтром из никелевой фольги.

XRD-исследования проводились также с использованием картографирования обратного пространства. Для этого использовался дифрактометр Super Nova (Agilent Technologies, Inc., Санта-Клара, США) с двумерным (2D) детектором (CCD Atlas S2) и рентгеновским излучателем с медным анодом ($\lambda = 1.5418\text{ \AA}$). Картографирование заключалось в измерении серии рентгенограмм в зависимости от угла поворота вокруг нормали к образцу.

Кривые намагничивания измерялись с помощью вибрационного магнитометра (VSM, vibrating-sample magnetometer) (Lake Shore Cryotronics, Вестервилль, США) при ориентации магнитного поля как по нормали („out-of-plane“), так и в плоскости структуры („in-plane“). Магнитное поле H менялось в пределах от $+20$ до -20 kOe .

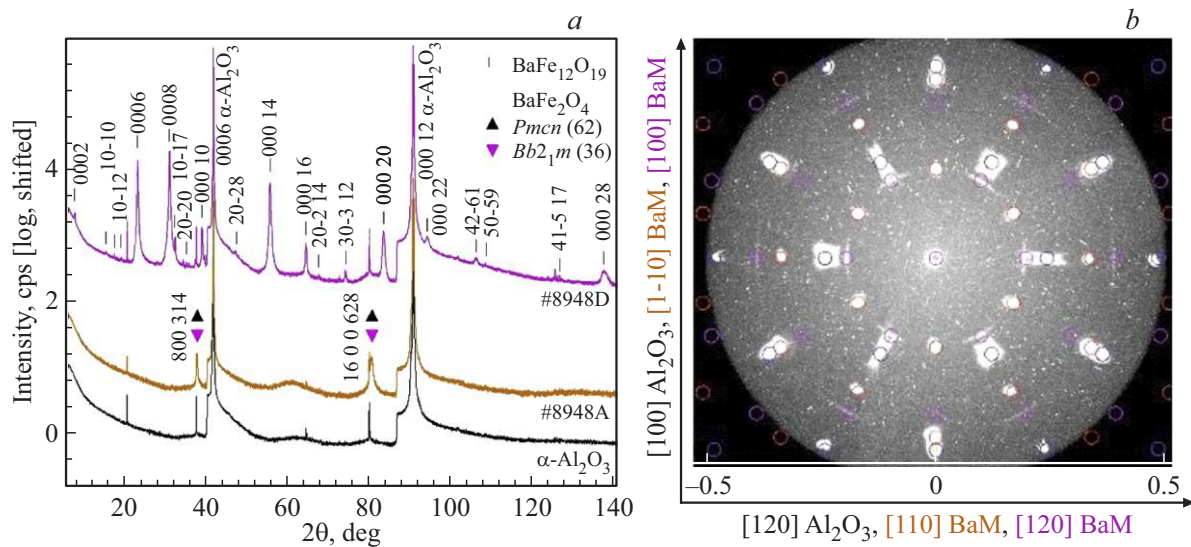


Рис. 1. (a) XRD θ – 2θ -сканы от подложки α - Al_2O_3 (0001) и образца #8948 до (#8948A) и после (#8948D) отжига при 1000°C в течение 10 min. Указаны индексы Миллера–Бравэ hkl наблюдаемых рефлексов ВаМ и подложки α - Al_2O_3 и индексы Миллера hkl наблюдаемых рефлексов модификаций BaFe_2O_4 . (b) Карты обратного пространства отожженного образца толщиной 300 nm в различных плоскостях. Синие, красные и фиолетовые кружки соответствуют Al_2O_3 , доминантной фазе ВаМ и текстурированной фазе ВаМ соответственно.

Спектральные и полевые зависимости РМОКЕ измерялись в диапазоне энергий фотонов 1.5–4 eV при комнатной температуре в магнитных полях до $H = 15$ кОе. При измерениях магнитное поле было направлено перпендикулярно поверхности образца. Линейно поляризованный свет, падающий из монохроматора, был S -поляризованным. Спектральные зависимости поперечного эффекта Керра (ТКЕ, transversal Kerr effect) измерялись в „in-plane“ магнитном поле H , ориентированном перпендикулярно плоскости падения света. Величина $\text{ТКЕ} = \Delta I/I_0$, где $\Delta I = I(+H) - I(-H)$ и I_0 интенсивность отраженного света в размагниченном состоянии. Магниторефрактивный эффект (MRE^S , magnetorefractive effect) измерялся в геометрии ТКЕ для S -поляризации падающего света. Величина $\text{MRE}^S(H) = \Delta I_{\text{MRE}}/I_0$, где $\Delta I_{\text{MRE}} = I(0) - I(H)$.

На рис. 1, a приведены XRD $\theta - 2\theta$ сканы от подложки Al_2O_3 (0001), исходной („as-grown“) структуры #8948 после приготовления, и этой же структуры после отжига на воздухе при температуре $T_{\text{ann}} = 1000^\circ\text{C}$. На рентгенограмме „as-grown“ пленки присутствуют только два отражения, которые идентифицируются, как отражения разного порядка от однотипных параллельных атомных плоскостей двух возможных ромбических модификаций BaFe_2O_4 (пространственные группы (пр. гр.) $Bb2_1m$ (36) и $Pm\bar{c}n$ (62)). Отражений от набора плоскостей другого типа не наблюдается, что свидетельствует о сильной преимущественной ориентации „as-grown“ пленки. Судя по индексам Миллера рефлексов, для двух возможных модификаций BaFe_2O_4 имеет место преимущественная ориентация вдоль направлений $[100]$ и $[314]$ соответственно. Отжиг приводит к кристаллизации гексафер-

рита $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ (пр. гр. $P6_3/mmc$ (194)) с преимущественной ориентацией вдоль направления $[hkl] = [0001]$ (рис. 1, a).

Результаты XRD-исследований методом картографирования обратного пространства для отожженного образца толщиной 300 nm (рис. 1, b) показывают хорошее соответствие между модельной обратной решеткой ВаМ и наблюдаемыми рефлексами отражения. Можно сделать вывод, что доминантная решетка пленки ВаМ повернута на 30° относительно решетки сапфира в плоскости образца. Однако видно, что в разрезе, построенном в плоскости образца (рис. 1, b), помимо доминантной решетки ВаМ (красные кружки) присутствует слегка текстурированные домены с той же кристаллической решеткой, что и доминантная, но без поворота на 30 градусов.

Исследования кривых намагничивания с помощью VSM показали (рис. 2), что в отожженных пленках толщиной $h = 50$ nm при ориентации магнитного поля H перпендикулярно плоскости структуры („out-of-plane“) наблюдаются практически прямоугольные петли гистерезиса. В отожженных пленках толщиной $h = 350$ – 500 nm петли гистерезиса значительно шире и их форма далека от прямоугольной. Существенное различие кривых намагничивания тонких и толстых пленок наблюдается при направлении магнитного поля в плоскости пленки („in-plane“) (рис. 2, b). Структурно совершенные пленки гексаферрита ВаМ на подложках Al_2O_3 (0001) должны иметь одноосную анизотропию с осью легкого намагничивания, нормальной к поверхности, поэтому переключение намагниченности в „in-plane“ геометрии должно происходить обратимым обра-

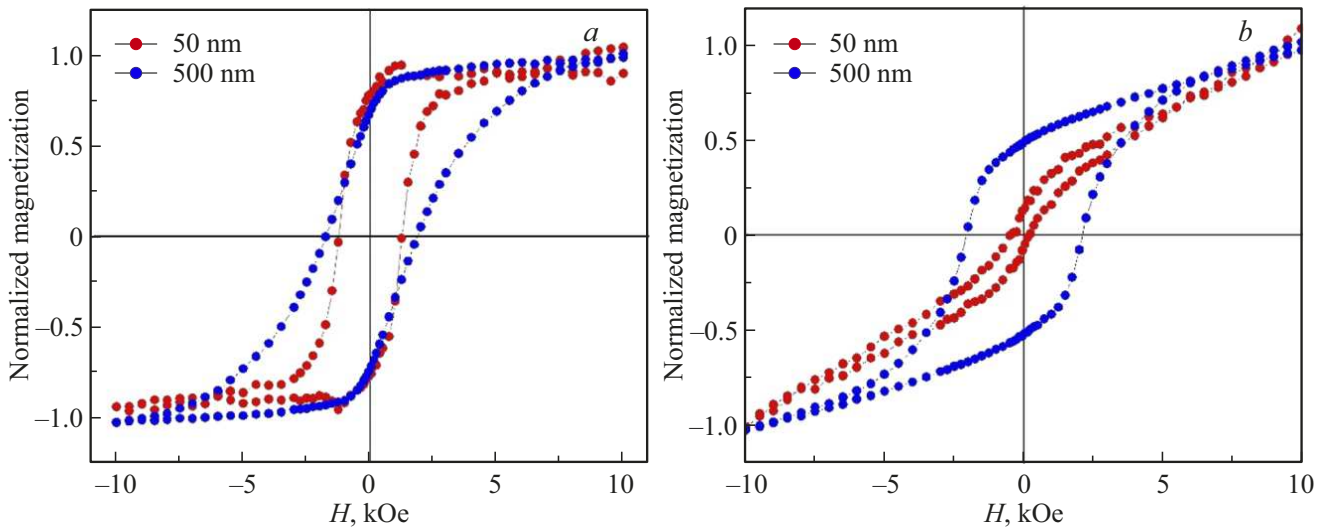


Рис. 2. Кривые намагничивания, измеренные с помощью VSM, в отожженных структурах толщиной $h = 50$ nm (красные точки) и $h = 500$ nm (синие точки) в (a) „out-of-plane“ и (b) „in-plane“ геометрии.

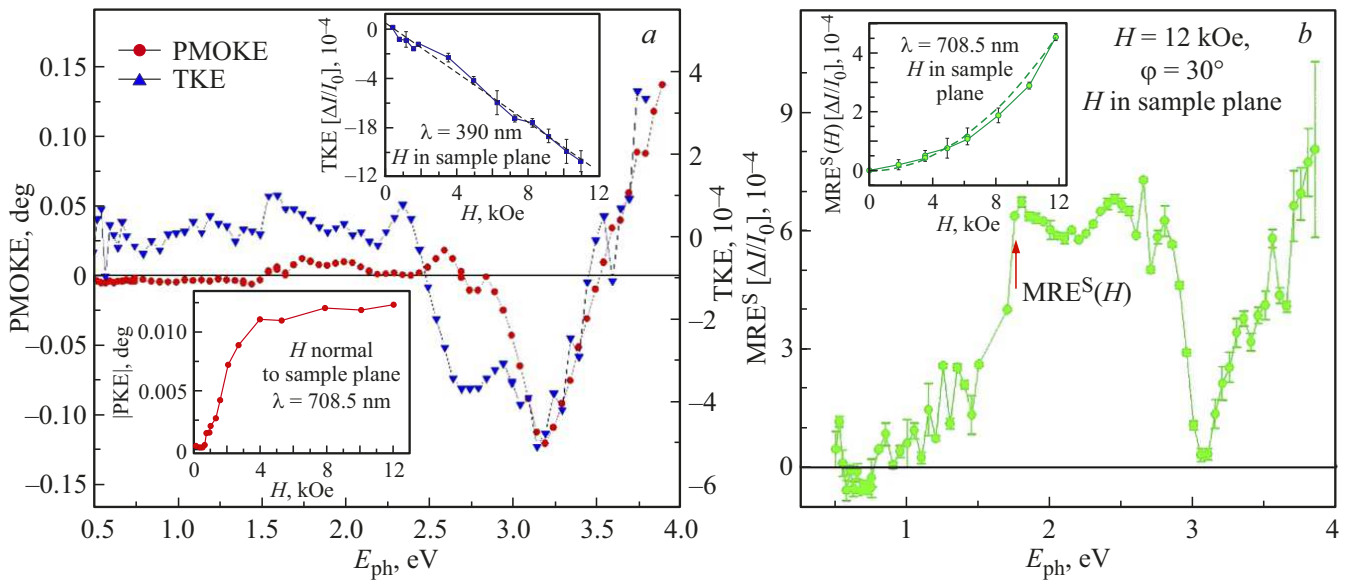


Рис. 3. (a) Спектральные зависимости полярного (PMOKE) и поперечного (ТКЕ) магнитооптического эффекта Керра и (b) спектр магнитооптического эффекта (MRES) в отожженной структуре #8948С (1 h, 1000°C). Левая нижняя вставка в (a) показывает зависимость PМОКЕ от магнитного поля H . На правой верхней вставке в (a) показана зависимость ТКЕ от H , измеренная при $\lambda = 390$ nm. Штриховая линия соответствует линейной по H подгонке экспериментальных точек. Вставка на (b) показывает зависимость MRE^S от H при $\lambda = 708.5$ nm. Штриховая линия соответствует квадратичной по H подгонке экспериментальных точек.

зом за счет вращения намагниченности. Ярво выраженная петля гистерезиса в структуре толщиной $h = 500$ nm (рис. 2, b) свидетельствует о значительном разбросе ориентации оси легкого намагничивания. Присутствие значительно более слабой петли в тонкой пленке #8948С в этой геометрии (рис. 2, b) говорит о том, что разброс ориентации оси легкого намагничивания в ней значительно меньше, т. е. структура этой пленки существенно ближе к идеальной.

На рис. 3, a показаны спектральные зависимости полярного (PМОКЕ) и экваториального (ТКЕ) эффектов Керра в структуре #8948С. Спектр MRE^S приведен на рис. 3, b. Характерной особенностью спектра PМОКЕ в ВаМ гексаферрите является появление сильных полос разного знака в области $E_{ph} \sim 3.18$ eV (PМОКЕ $\approx -0.15^\circ$) и $E_{ph} \sim 4.6$ eV (PМОКЕ $\approx 0.28^\circ$) [3]. Эти полосы наблюдались также в пленках ВаМ, выращенных методом металлоорганиче-

ского разложения [4] (при $E_{ph} \sim 3.15$ и 4.25 eV), а также в $PbFe_{12}O_{19}$ и $SrFe_{12}O_{19}$, приготовленных методом распыления [5]. Природа этих полос связана с оптическими переходами с переносом заряда (от иона Fe^{3+} на O^{2-}) для ионов Fe^{3+} в октаэдрических и тетраэдрических позициях [3]. На рис. 3, *a* отчетливо видно проявление полосы РМОКЕ при $E_{ph} \sim 3.2$ eV, изменение знака РМОКЕ при $E_{ph} \sim 3.6$ eV и увеличение положительных значений РМОКЕ выше $E_{ph} \sim 3.6$ eV. Также полоса при $E_{ph} \sim 3.2$ eV проявляется в спектре ТКЕ (рис. 3, *a*) и MRE^S (рис. 3, *b*).

Полоса FMR отожженной структуры #8948C на частоте $F = 50$ GHz состоит из набора узких линий с резонансными полями в диапазоне $H_{res} = 5.6–5.8$ kOe. Резонансное поле и ширина основной линии FMR составляют $H_{res} = 5.76$ kOe, $\Delta H_{res} = 20$ Oe. Присутствие линий при меньших полях, по-видимому, связано с магнитной неоднородностью слоя из-за разброса поля анизотропии, направления оси легкого намагничивания и т.п. Используя значения резонансного поля для основной линии $H_{res} = 5.76$ kOe, намагниченности насыщения $4\pi M_s = 4.3$ kG, полученное с помощью VSM, частоту измерения $F = 50$ GHz, мы получили оценку поля анизотропии $H_a \cong 16.4$ kOe, что близко к значениям $H_a = 17.0$ kOe в структуре $BaFe_{10.5}Mn_{1.5}O_{19}/Al_2O_3(0001)$ [6].

Таким образом, проведенное исследование показало, что в неотожженных образцах существует ромбическая фаза $BaFe_2O_4$ в одной из двух возможных модификаций. После отжига фаза $BaFe_2O_4$ исчезает и появляется гексагональная фаза $BaFe_{12}O_{19}$. Только отожженные структуры демонстрируют магнитные свойства. В них наблюдаются петли с большой остаточной намагниченностью, что необходимо для СВЧ-приборов на основе прямых объемных спиновых волн. Наиболее узкие и прямоугольные петли появляются в структурах с тонкими ($h = 50$ nm) слоями гексаферрита. В них наблюдаются узкие линии FMR с полушириной $\Delta H_{res} = 20$ Oe. В структурах с толщиной слоя $h = 350–500$ nm прямоугольность петли уменьшается с увеличением h . Магнитооптические спектры отожженных пленок показывают присутствие полос, связанных с электронными переходами с переносом заряда в гексаферрите BaM.

Благодарности

Авторы выражают благодарность А. Урбановичу, И. Прибытковой и проф. Р. Бурковскому за рентгенографические измерения на дифрактометре Super Nova (Agilent).

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 22-22-00768, <https://rscf.ru/project/22-22-00768/>

Рентгенофазовые исследования порошков выполнены на оборудовании Объединенного исследовательского

центра „Материаловедение и диагностика в передовых технологиях“ (ФТИ им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] R.C. Pullar. *Prog. Mater. Sci.* **57**, 7, 1191 (2012).
- [2] V.G. Harris. *IEEE Trans. Magn.* **48**, 3, 1075 (2012).
- [3] A. Lisfi, J.C. Lodder, P. de Haan, M.A.M. Haast, F.J.G. Roesthuis. *J. Magn. Soc. Jpn.* **22**, 159 (1998).
- [4] L.E. Jakubisová, Š. Višňovský, P. Šíroký, D. Hrabovský, J. Pištora, I. Vávra, E. Dobročka, P. Krišťan, H. Štěpánková, I. Harward, Z. Celinski. *Opt. Mater. Express* **5**, 6, 1323 (2015).
- [5] Š. Višňovský, P. Šíroký, R. Krishnan. *Czech. J. Phys. B* **36**, 1434 (1986).
- [6] A.L. Geiler, A. Yang, X. Zuo, S.D. Yoon, Y. Chen, V.G. Harris. *IEEE Trans. Magn.* **44**, 11, 2966 (2008).

Редактор К.В. Емцев