

02 Тонкие пленки гексаферрита ВаМ (BaFe₁₂O₁₉) на подложках Al₂O₃(01-12): кристаллическая структура и магнитные свойства

© Б.Б. Кричевцов¹, А.М. Коровин¹, С.М. Сутурин¹, А.А. Левин¹, Н.С. Соколов¹, В.В. Федоров²,
А.В. Телегин³, Д.А. Шишкин³

¹ ФТИ им. А.Ф. Иоффе,
Санкт-Петербург, Россия

² Академический университет им. Ж.И. Алферова,
Санкт-Петербург, Россия

³ Институт физики металлов им. М.Н. Михеева,
Екатеринбург, Россия

e-mail: boris@mail.ioffe.ru

Поступила в редакцию 28.04.2024 г.

В окончательной редакции 21.07.2024 г.

Принята к публикации 30.10.2024 г.

Эпитаксиальные пленки гексаферрита ВаМ (BaFe₁₂O₁₉) толщиной 50 нм выращены на подложках R-среза сапфира α -Al₂O₃ (01–12) методом лазерной молекулярно-лучевой эпитаксии (LMBE). Исследованы их кристаллическая структура, магнитные свойства до и после проведения послеростового отжига. Обнаружено, что в отожженных пленках, полученных методом LMBE, легкая ось магнитной анизотропии отклонена от нормали к поверхности, что дает возможность переключать намагниченность как нормальным, так и тангенциальным магнитными полями, и приводит к зависимости формы петель гистерезиса от ориентации поля в плоскости пленки.

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

DOI: 10.61011/OS.2024.11.59495.6457-24

Ограничения в скорости и объеме передаваемой информации в современных компьютерных чипах, действие которых основано на использовании электрических токов, связано с выделением джоулева тепла. Как показано в ряде работ, эта проблема может быть решена с помощью использования спиновых волн (СВ) для передачи и обработки информации [1,2]. Для возбуждения, управления и приема СВ нужны тонкопленочные магнитные материалы, обладающие малым затуханием СВ, возможностью управлять их направлением и работать на частотах ~ 50 – 100 GHz. Перспективными материалами для этих целей являются гексаферриты, в частности, гексаферрит ВаМ (BaFe₁₂O₁₉), обладающий высокими значениями поля одноосной анизотропии $H_a \sim 18$ кОе и намагниченности насыщения $4\pi M_s \sim 4.6$ кГ, позволяющими реализовать устройства на таких частотах. Присутствие сильной одноосной магнитной анизотропии дает возможность получать тонкие пленки гексаферрита ВаМ, в которых в отсутствие магнитного поля **H** реализуется монокристаллическое состояние с ориентацией намагниченности, нормальной плоскости структуры [3–6].

Важно отметить, что для практических применений также представляют интерес структуры, в которых в отсутствие поля **H** реализуется состояние с намагниченностью **M**, лежащей в плоскости пленки или направленной под углом к ней [7,8]. В последнем случае переключение намагниченности возможно магнитным полем, ориентированным как в плоскости структуры (**H**_{in-plane}),

так и нормально к этой плоскости (**H**_{out-of-plane}). Такое состояние может быть реализовано соответствующим выбором подложки [8]. В данной работе выращены пленки гексаферрита ВаМ методом лазерной молекулярно-лучевой эпитаксии (LMBE) на подложках R-среза Al₂O₃ и исследован процесс переключения намагниченности при различных ориентациях магнитного поля **H**.

Пленки гексаферрита ВаМ выращивались на подложках Al₂O₃(01–12), в которых направление оси C_3 ориентировано под углом $\sim 62^\circ$ к плоскости. Пленки выращивались при температуре $T_{gr} = 700^\circ\text{C}$ и давлении кислорода $p = 0.06$ mbar. После роста структуры извлекались из ростовой камеры и отжигались в муфельной печи при температуре $T_{ann} = 1000^\circ\text{C}$ в течение часа. Толщина пленок составляла 50 нм. Калибровка скорости роста производилась с помощью кварцевых весов. Кристаллическая структура пленок контролировалась с помощью картографирования картин рассеяния быстрых электронов в отражении (RHEED). Морфология поверхности пленок и подложек исследовалась с помощью атомно-силового микроскопа INTEGRA (NT-MDT LLC, Зеленоград, Россия).

Рентгенодифракционные (XRD) измерения проводились в режиме сканирования $\theta-2\theta$ на порошковом рентгеновском дифрактометре D2 Phaser (Bruker AXS, Карлсруэ, Германия), снабженном линейным полупроводниковым позиционно-чувствительным детектором LYNXEYE (Bruker AXS), в вертикальной гео-

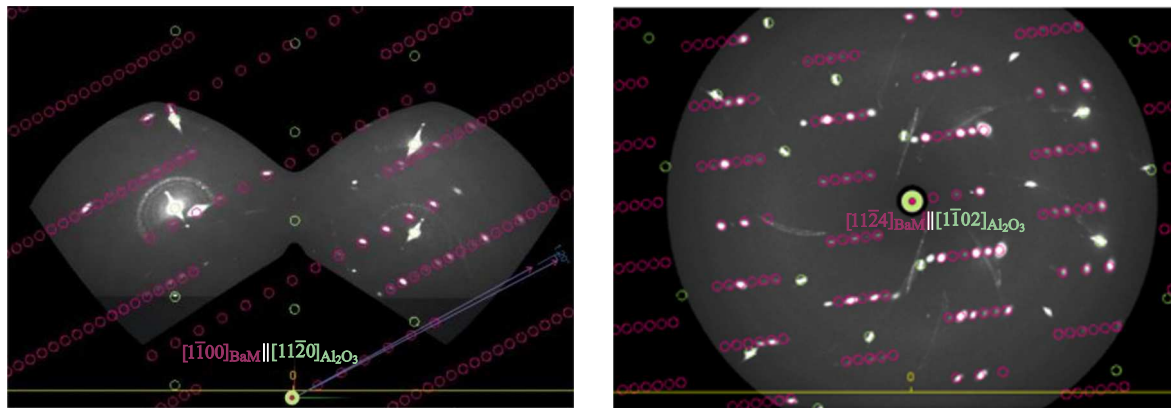


Рис. 1. Два перпендикулярных сечения обратного пространства, снятые с помощью XRD в образце гексаферрита ВаМ, выращенного на $\text{Al}_2\text{O}_3(1-102)$ и прошедшего отжиг. Красные кружки — модельные положения рефлексов решетки гексаферрита ВаМ. Зеленые кружки соответствуют подложке Al_2O_3 . Красные и зеленые цифры на осях относятся к пленке и подложке соответственно.

метрии $\theta-\theta$ Брэгга–Брентано. Использовалось $\text{Cu-K}\alpha$ -излучение (длина волны $\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$) рентгеновской трубки с медным анодом, отфильтрованное фильтром из никелевой фольги.

Кроме того, XRD-исследования проводились с использованием картографирования обратного пространства. Для этого использовался дифрактометр Super Nova (Agilent Technologies, Inc., США) с двумерным (2D) детектором (CCD Atlas S2) и рентгеновским излучателем с медным анодом ($\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$). Для анализа картин RHEED и XRD, полученных для различных θ , применялся метод трехмерного картографирования картин дифракции.

Петли магнитного гистерезиса полученных структур измерялись с помощью вибрационной магнитометрии (VSM) на установке Lake Shore 7400 Cryotronics (Lake Shore Cryotronics, Inc., США). Магнитное поле \mathbf{H} прикладывалось нормально к плоскости (out-of-plane), либо под различными углами (азимутами) в плоскости образца (in-plane). В обоих случаях измерялась компонента магнитного момента ($\mathbf{M}_{\text{out-of-plane}}$ или $\mathbf{M}_{\text{in-plane}}$), параллельная магнитному полю ($\mathbf{H}_{\text{out-of-plane}}$ или $\mathbf{H}_{\text{in-plane}}$ соответственно).

Кроме того, для измерения петель использовалась установка лазерной поляриметрии ($\lambda = 405 \text{ nm}$) магнитооптического полярного эффекта Керра (РМОКЕ). Изучались кривые намагничивания при ориентации магнитного поля \mathbf{H} , нормальной плоскости структуры, а также при различных азимутах θ в плоскости структуры. В последнем случае измерялись зависимости нормальной к плоскости компоненты намагниченности от магнитного поля, ориентированного в плоскости: $\mathbf{M}_{\text{out-of-plane}}(\mathbf{H}_{\text{in-plane}})$.

Анализ изображений поверхности отожженной структуры толщиной 50 nm показал, что пленка состоит из нанокристаллитов с латеральными размерами $\sim (200-300) \text{ nm}$. Кристаллиты плотно упакованы, но

между некоторыми имеются довольно глубокие пустоты, достигающие практически до подложки. Средняя шероховатость такой поверхности составляет $RMS = 15.8 \text{ nm}$ на площади $5 \times 5 \mu\text{m}$.

Как показали исследования пленок, выращенных на подложках С-среза сапфира $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$, кристаллическая структура гексаферрита ВаМ образуется только после отжига на воздухе [5,6]. Такая же ситуация наблюдается и при росте $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ на подложках R-среза сапфира. Результаты исследования кристаллической структуры с помощью RHEED и XRD свидетельствуют, что в структурах $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}/\text{Al}_2\text{O}_3(01-12)$, как и в $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}/\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ [5,6], кристаллическая решетка гексаферрита ВаМ (PDF-2 01-075-9113) реализуется только после проведения отжига на воздухе при $T = 1000^\circ\text{C}$ (рис. 1).

Моделирование картин дифракции XRD показало, что в пленке, выращенной на подложке R-среза сапфира $\text{Al}_2\text{O}_3(01-12)$, после отжига получается монокристаллическая структура гексаферрита ВаМ высокого кристаллического качества, в которой отсутствуют поликристаллическая и текстура. Все рефлексы относятся либо к подложке, либо к пленке ВаМ и в структуре отсутствуют другие фазы и текстура (развороты вокруг нормали). Эпитаксиальные соотношения пленка–подложка: направление $[1-102]_{\text{Al}_2\text{O}_3}$ параллельно $[11-24]_{\text{BaM}}$ в плоскости подложки, направление $[11-20]_{\text{Al}_2\text{O}_3}$ почти параллельно направлению $[22-4-1]_{\text{BaM}}$ с разворотом $\sim 1.2^\circ$ вокруг оси $[1-100]_{\text{BaM}}$. Гексагональная ось пленки отклонена от нормали к поверхности на угол $\varphi \sim 62^\circ$.

Как и в пленках, выращенных на подложках $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$, магнитные свойства в структурах $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}/\text{Al}_2\text{O}_3(01-12)$ проявляются только после проведения отжига на воздухе. На рис. 2 представлены петли гистерезиса в поле $\mathbf{H}_{\text{out-of-plane}}$, измеренные с помощью РМОКЕ и VSM. Петли РМОКЕ при $\mathbf{H}_{\text{out-of-plane}} = -5 - +20 \text{ kOe}$ и $+5 - -20 \text{ kOe}$

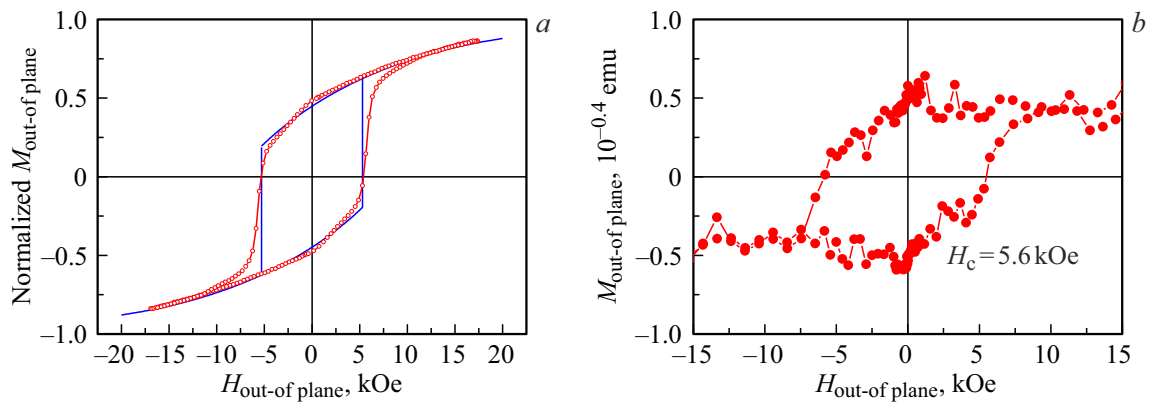


Рис. 2. (a) Петля гистерезиса, измеренная с помощью PMOKE в поле $H_{\text{out-of-plane}}$ (красные кружки). Синяя сплошная кривая — результаты расчета петли по модели Стонера–Волфорта для значений $4\pi M_s = 4.5$ kG, $H_a = 18$ kOe, $\varphi = 62^\circ$. (b) Петля гистерезиса, измеренная с помощью VSM после вычитания линейной по H части, проявляющейся в сильных полях.

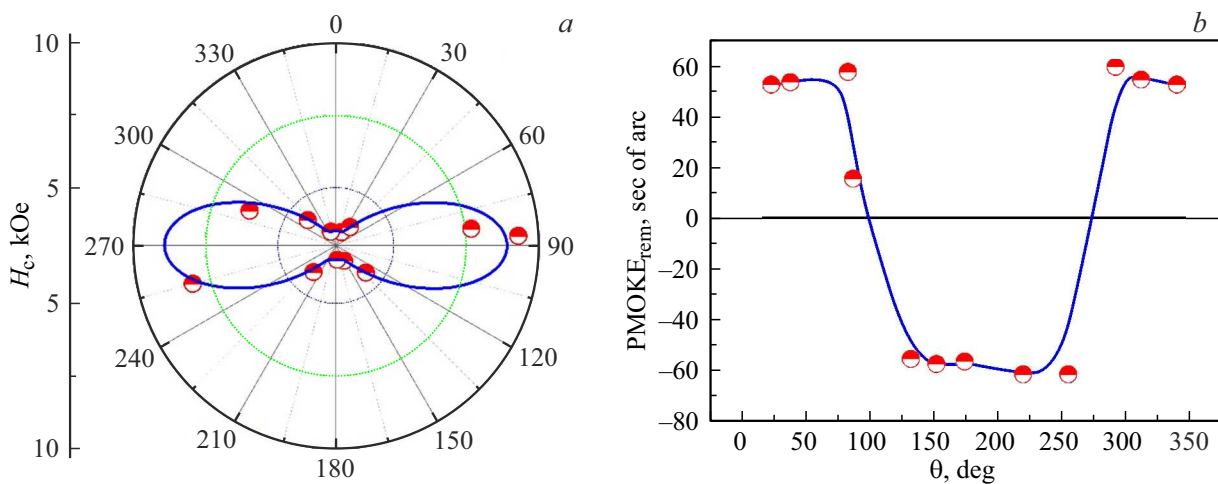


Рис. 3. (a) Зависимость коэрцитивного поля H_c от азимута магнитного поля в плоскости θ , полученная из петель PMOKE. (b) Угловая зависимость остаточной величины PMOKE_{rem}. Синие сплошные линии приведены для удобства восприятия.

образованы плавными, обратимыми зависимостями $M_{\text{out-of-plane}}(H_{\text{out-of-plane}})$, связанными с поворотом намагниченности к направлению магнитного поля, и необратимыми скачками намагниченности при $H \sim \pm 5$ kOe, вызванными образованием и движением доменных стенок. Аналогичные скачки наблюдаются и в петлях, полученных с помощью VSM (рис. 2, b). Отметим, что после вычитания линейного по H вклада в этих петлях не заметен поворот намагниченности. Это связано с сильным вкладом в петли, измеренные с помощью VSM, восприимчивости подложки, который не проявляется в петлях PMOKE, поскольку свет на длине волны 405 nm сильно поглощается в пленке. Значение остаточной намагниченности в петлях PMOKE показывает, что в отсутствие магнитного поля в пленках реализуется монокристаллическое состояние с ориентацией намагниченности \mathbf{M} примерно вдоль оси C_3 подложки. Это подтверждает результаты XRD в том, что гексагональная ось и

соответственно ось легкого намагничивания в пленках ориентированы под углом $\sim 62^\circ$ к плоскости подложки.

Петли магнитного гистерезиса в магнитном поле $H_{\text{in-plane}}$, измеренные с помощью PMOKE и VSM, демонстрируют сильную зависимость формы петли, коэрцитивного поля H_c и остаточной намагниченности M_{rem} от азимута магнитного поля θ в плоскости структуры (рис. 3). Отметим, что в случае PMOKE измеряемые петли обусловлены зависимостями $M_{\text{out-of-plane}}(H_{\text{in-plane}})$, а в случае VSM — $M_{\text{in-plane}}(H_{\text{in-plane}})$. Анизотропия петель связана с тем, что с изменением азимута магнитного поля θ изменяется и проекция оси легкого намагничивания (ОЛН) на направление магнитного поля $H_{\text{in-plane}}$. В результате скачки намагниченности должны наблюдаться, когда эта проекция отлична от нуля. Если магнитное поле перпендикулярно ОЛН, должны наблюдаться только повороты намагниченности, что и проявляется на рис. 3. При $\theta = 0^\circ$ и 180° проекция ОЛН параллельна магнитному полю и наблюдается

узкая петля с $H_c = 3.5 \text{ kOe}$ и большим остаточным значением РМОКЕ. При $\theta = 90^\circ$ и 270° остаточное значение РМОКЕ изменяется практически скачком со сменой знака, что отражает изменение проекции ОЛН на направление магнитного поля (рис. 3, *b*).

Таким образом, тонкие пленки гексаферрита ВаМ, выращенные методом лазерной молекулярно-лучевой эпитаксии на подложках $\text{Al}_2\text{O}_3(01-12)$, после отжига на воздухе демонстрируют кристаллическую структуру гексаферрита ВаМ с направлением оси шестого порядка под углом $\sim 62^\circ$ к плоскости и одноосную магнитную анизотропию с направлением ОЛН вдоль этой оси. В отсутствие магнитного поля реализуется монодоменное состояние с направлением намагниченности вблизи ОЛН. Петли магнитного гистерезиса наблюдаются в поле, ориентированном как в плоскости, так и нормально к плоскости пленки. Обнаружена анизотропия петель магнитного гистерезиса при перемагничивании пленки тангенциальным магнитным полем. Показано, что направление намагниченности можно изменять в широких пределах магнитным полем, ориентированным как нормально, так и в плоскости структуры, что расширяет возможности применений таких пленок в СВЧ-устройствах.

Благодарности

Авторы признательны С.В. Наумову (ИФМ УрО РАН) за помощь в синтезе мишеней гексаферрита ВаМ.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 22-00768, <https://rscf.ru/project/22-22-00768/>. Измерения VSM были выполнены в ИФМ УрО РАН по Госзаданию Минобрнауки РФ „Спин“ № 122021000036-3 после окончания вышеупомянутого проекта РФФИ.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] V.V. Kruglyak, S.O. Demokritov, D. Grundler. *J. Phys. D.*, **43**, 264001 (2010).
- [2] D.J. Grundler. *J. Phys. D.*, **49**, 391002 (2016).
- [3] V.G. Harris, Zh. Chen, Y. Chen et al. *J. Appl. Phys.*, **99**, 08M911 (2006).
- [4] V.G. Harris. *IEEE Transactions on magnetics*, **48**, 1075 (2012).
- [5] B. Krichevstov, A. Korovin, S. Suturen et al. *Materials*, **16**, 4417 (2023).
- [6] B.B. Krichevstov, A.M. Korovin, A.A. Levin et al. *Phys. Sol. St.*, **65**, 2012 (2023).
- [7] X. Zhang, S. Meng, D. Song et al. *Sci. Rep.*, **7**, 44193 (2017). DOI: 10.1038/srep44193
- [8] T.L. Hylton, M.A. Parker, K.R. Coffey, J.K. Howard. *J. Appl. Phys.*, **73**, 6257 (1993). DOI: 10.1063/1.354065