## Проявление магнетизма висмута в пленках феррита-граната

© В.Ф. Шкарь, В.П. Денисенков\*, А.М. Гришин\*, А.А. Ялали\*, С.И. Харцев\*, Е.И. Николаев, В.Н. Саяпин

Донецкий физико-технический институт Национальной академии наук Украины, 83114 Донецк, Украина \* Department of Condensed Matter Physics, Royal Institute of Technology, S-10044 Stockholm, Sweden

E-mail: Shkar@donapex.net.ua

(Поступила в Редакцию 16 января 2003 г. В окончательной редакции 23 мая 2003 г.)

> Методом ферромагнитного резонанса исследованы пленки феррита-граната висмута, полученные электронно-лучевым и лазерным напылением на (001)-ориентированные подложки скандий-галлий-гадолиниевого граната. Высказано предположение, что дополнительные минимумы на угловой зависимости резонансного поля можно объяснить наличием магнитного момента ионов висмута.

Работа выполнена при частичной поддержке фонда НТЦУ (грант № 1583).

Интерес к феррит-гранатовым пленкам, содержащим висмут, обусловлен тем, что такие пленки обладают значительным эффектом Фарадея, позволяющим использовать их в магнитооптических устройствах [1]. Предполагалось, что ион висмута, являясь, как и ион иттрия, диамагнитным, не должен ухудшать магнитные и динамические характеристики железо-иттриевого граната (ЖИГ) при замещении иттрия висмутом. Следовательно, полностью замещенный висмутовый феррит-гранат при комнатной температуре должен иметь, как и ЖИГ, намагниченность насыщения  $4\pi M = 1760 \,\mathrm{G}$  и ширину линии  $\Delta H$  ферромагнитного резонанса ( $\Phi MP$ ) приблизительно 0.5 Ое. В сочетании с указанным эффектом Фарадея это позволяет считать, что такие пленки могут найти широкое применение в спин-волновой магнитооптической электронике.

Однако на практике такой гранат имеет несколько худшие магнитные и значительно худшие динамические характеристики. При комнатной температуре у железовисмутового граната (ЖВГ) намагниченность насыщения находится в пределах 1500-1650 G, а ширина линии ФМР в зависимости от технологии получения пленок равна приблизительно 25-30 Oe [2,3]. Следовательно, ион висмута в структуре граната, по-видимому, не является диамагнитным ионом (магнитные ионы в додекаэдрических междоузлиях уширяют резонансную линию [4]).

При синтезе ЖВГ одним из исходных веществ является оксид висмута, который традиционно рассматривался как диамагнитное соединение. Однако результаты ряда работ показали, что его магнитные и электрические свойства гораздо сложнее. Так, методом ЯКР <sup>209</sup>Ві на порошкообразных и монокристаллических образцах альфа-модификации оксида висмута обнаружены расщепления всех резонансных линий [5–7] в отсутствие внешнего магнитного поля. Этот экспериментальный факт был интерпретирован как следствие наличия в альфа-модификации оксида висмута локальных магнитных полей величиной 150–200 G [5,7,8]. В работах [9,10] при исследовании температурных и полевых зависимостей намагниченности альфа-модификации оксида висмута с помощью СКВИД-магнитометра были выявлены три магнитные подсистемы: упорядоченная, парамагнитная и диамагнитная. Величина эффективного магнитного момента, оцененная по температурным зависимостям намагниченности, составляла  $\sim 0.1\,\mu_{\rm B}$ /аt.

Установлено также, что это соединение при низких температурах обладает линейным магнитоэлектрическим эффектом: электрическая поляризация монокристаллического образца индуцировалась внешним магнитным полем. Было высказано предположение о тесной связи электрических и магнитных свойств, механизм которой еще не установлен. Эти необычные свойства оксида висмута сохраняются вплоть до комнатных температур. Делается вывод, что природа этих свойств имеет более сложный характер, чем магнетизм соединений переходных и редкоземельных металлов, поскольку висмут не содержит внутренних незаполненных d- или f-электронных оболочек [11].

Для выяснения того, сохраняются ли эти необычные магнитные свойства висмута в ЖВГ, нами были проведены исследования температурных и угловых зависимостей спектров ФМР на пленках ЖВГ, полученных методами магнетронного и лазерного напыления. Результаты этих исследований приведены в данной работе.

## 1. Образцы и ФМР-установка

Образцы ЖВГ были получены методом напыления на подложки (001)-ориентированного скандий-галлийгадолиниевого граната. Образец № 1, полученный методом электронно-лучевого напыления, имел толщину 630 nm,  $4\pi M = 1500$  G,  $\Delta H = 35$  Oe. Образец № 2 был получен методом импульсного лазерного напыления и имел толщину приблизительно  $1\mu$ m,  $4\pi M = 630$  Oe,  $\Delta H = 25$  Oe. Подробно технология приготовления таких пленок описана в работах [2,3]. Характеристики образцов определялись стандартными методами [1].

2228

Радиоспектрометр ФМР позволял проводить исследования магнитных резонансов в двух взаимно перпендикулярных плоскостях — по полярному углу и по азимуту. При исследовании температурных зависимостей ФМР использовалась вставка с микрополосковой структурой в виде меандра. Образец размещался на поворотном устройстве и плотно прижимался к микрополоску. Вставка помещалась в криостат, в котором предусмотрена возможность изменения температуры образца. Источником внешнего магнитного поля служила магнитная часть ЯМР-спектрометра фирмы "Бруккер". Установка управлялась с помощью компьютера, что позволяло определять значения резонансного поля и ширины линии ФМР в автоматическом режиме.

При комнатной температуре в качестве измерительной ячейки использовался также прямоугольный волновод. Образец при этом помещался в однородную область СВЧ-магнитного поля волновода. Это давало возможность сравнивать спектры ФМР от разных измерительных ячеек (меандра и волновода), что важно при анализе этих спектров. Как показал эксперимент, спектры в обоих случаях имели одинаковый вид.

## Экспериментальные результаты и их обсуждение

Исследования ФМР проводились на пленках ЖВГ, полученных методами электронного (образец № 1) и лазерного (образец № 2) напыления на (001)-ориентированные подложки из скандий-галлий-гадолиниевого граната.

На рис. 1 и 2 показаны угловые зависимости резонансного поля и ширины линии ФМР в плоскости пленки при комнатной температуре для образцов № 1 и 2 соответственно.

Из рисунков видно, что анизотропия ширины линии ФМР отличается от анизотропии резонансного поля тем, что для последнего наблюдаются дополнительные минимумы в направлении осей трудного намагничивания. Эти минимумы имеют место и при температуре 77 К. Теоретические расчеты показали, что они не обусловлены магнитной кубической кристаллографической анизотропией.

ФМР в ферритах-гранатах довольно хорошо изучен и является одним из надежных методов определения магнитных и динамических характеристик пленок [1,4].

Для механизмов релаксации, которые наблюдаются как в чистом ЖИГ, так и в ЖИГ с редкоземельными примесями, существенным является тот факт, что магнитная кристаллографическая анизотропия приводит и к анизотропии ширины линии ФМР, причем минимальные значения ширины линии приходятся на оси трудного намагничивания [4].

В исследованных образцах в плоскости (001), которая является плоскостью пленки, находятся кристаллогра-



**Рис. 1.** Угловые зависимости резонансного поля и ширины линии ФМР в плоскости пленки при комнатной температуре для образца № 1.



Рис. 2. Угловые зависимости резонансного поля и ширины линии ФМР в плоскости пленки при комнатной температуре для образца № 2.

фические оси типа  $\langle 001 \rangle$  и  $\langle 011 \rangle$ , поэтому кристаллографическая кубическая анизотропия и должна проявляться в анизотропии резонансного поля и ширины линии ФМР [4].

Если предположить, что ионы висмута являются немагнитными и что по аналогии с ЖИГ анизотропия в ЖВГ определяется только магнитными ионами железа, то должны наблюдаться минимумы резонансного поля при ориентации внешнего магнитного поля вдоль осей типа (011) и максимумы при ориентации вдоль осей типа (001) [4], поскольку при комнатной температуре кубическая анизотропия для ЖИГ обусловлена только первой константой и имеет отрицательную величину. Однако, как видно из рис. 1 и 2, эта корреляция между шириной линии и резонансным полем отсутствует для исследованных пленок ЖИГ: в то время как для анизотропии ширины линии в ЖВГ наблюдается аналогия с анизотропией ширины линии в ЖИГ, резонансное поле имеет дополнительные минимумы вдоль осей трудного намагничивания. Для образца № 1 эти дополнительные минимумы соизмеримы с основными. Следовательно, в пленках ЖВГ существует источник дополнительной магнитной анизотропии, который проявляется при анизотропии резонансного поля и отсутствует при анизотропии ширины линии, что не характерно даже для магнитных редкоземельных ферритов-гранатов при комнатной температуре. При низких же температурах редкоземельная подсистема является магнитоупорядоченной, и для образцов ЖИГ с примесями наблюдается влияние ионов с сильной спин-орбитальной связью на ферромагнитный резонанс. Для некоторых ионов это влияние проявляется в виде дополнительных максимумов на угловых зависимостях резонансного поля и ширины линии [4,12–14].

Таким образом, можно предположить, что, как и для случая альфа-модификации оксида висмута, ион висмута в феррите-гранате может находиться в парамагнитном состоянии. Тогда ферримагнитный ансамбль подрешетки железа намагничивает подрешетку висмута антипараллельно своей результирующей намагниченности (аналогично случаю редкоземельной подрешетки при низких температурах [15]). Этим можно объяснить заниженное значение намагниченности насыщения ЖВГ по сравнению с ЖИГ, которое наблюдается в эксперименте. Если, как показано в [9,10], величина эффективного магнитного момента составляет  $0.1 \mu_{\rm B}$  / at. Bi, а результирующая намагниченность подрешетки железа равна 5.9 $\mu_{\rm B}$  [16], что при комнатной температуре для ЖИГ составляет 1760 G, то намагниченность насыщения для ЖВГ должна быть равна 5.6 µ<sub>В</sub> (три иона висмута на формульную единицу), что равняется 1670 G. В другом случае [5,7,8] речь идет о величине локальных магнитных полей висмута порядка 150-200 G, что дает величину для ЖВГ 1160-1310 G.

Понятно, что окружение висмута в структуре граната отличается от характерного для моноклинной структуры альфа-модификации оксида висмута, и эти расчеты являются приблизительными. Однако они указывают диапазон возможных значений намагниченности ЖВГ. Такой диапазон тем более возможен, если принять во внимание, что в гранате, так же как и в оксиде [9,10], у висмута, вероятно, существует возможность образовывать несколько магнитных подсистем.

Тогда одно из возможных упорядочений будет приводить (как в образце № 1) к намагниченности насыщения 1500 G и величине дополнительных минимумов глубиной порядка 70 Oe, а другое (как в образце № 2) к намагниченности насыщения величиной 1650 G и глубине минимумов 10–20 Oe.

Ранее установлено, что в замещенных пленках ЖИГ, полученных методом жидкофазной эпитаксии на (111)-ориентированных подложках галлий-гадолиниевого граната, присутствие висмута приводит к появлению одноосной магнитной анизотропии вдоль оси [111], нормальной к плоскости пленки [1]. По-видимому, механизм формирования одноосной анизотропии в таких пленках является тем же механизмом, который приводит к возникновению дополнительных минимумов в пленках ЖВГ.

Следовательно, можно предположить, что в ферритегранате, как и в альфа-модификации оксида висмута, ион висмута проявляет магнитные свойства.

Авторы выражают благодарность Набуясу Адачи за предоставленные образцы.

## Список литературы

- Элементы и устройства на цилиндрических магнитных доменах. Справочник / Под ред. Н.Н. Евтихиева, Б.Н. Наумова. Радио и связь, М. (1987). 488 с.
- [2] N. Okuda, T. Katayama, H. Kobayashi, N. Kobayashi. J. Appl. Phys. 67, 9, 4944 (1990).
- [3] N. Adachi, V.P. Denysenkov, S.I. Khartsev, A.M. Grishin, T. Okuda. J. Appl. Phys. 88, 5, 2734 (2000).
- [4] А.Г. Гуревич, Г.А. Мелков. Магнитные колебания и волны. Наука, М. (1994). 464 с.
- [5] А.А. Богуславский, Г.К. Семин. ЖФХ 53, 1, 33 (1979).
- [6] Г.К. Семин, А.В. Прыгин, А.А. Богуславский. Изв. АН СССР. Сер. физ. 49, 7, 1412 (1985).
- [7] E.A. Kravchenko, V.G. Orlov. Z. Naturforsch. 49a, 2, 418 (1994).
- [8] N.E. Ainbinder, G.A. Volgina, E.A. Kravchenko, A.N. Osipenko, A.A. Gippius, Suan Hai Fam, A.A. Bush. Z. Naturforsch. **49a**, *2*, 425 (1994).
- [9] А.В. Волкозуб, О.В. Снигирев, В.Г. Орлов, Э.А. Кравченко, А.А. Буш, С.В. Федотов, Л.Н. Холодковская, А.А. Кусаинова. ФТТ 33, 8, 2506 (1991).
- [10] A.I. Kharkovskii, V.I. Nizhankovskii, E.A. Kravchenko, V.G. Orlov. Z. Naturforsch. 51a, 3–4, 665 (1996).
- [11] В.Г. Орлов, А.А. Буш, С.А. Иванов, В.В. Журов. ФТТ 39, 5, 865 (1997).
- [12] J.F. Dillon, jr., J.W. Nielsen. Phys. Rev. 120, 1, 105 (1960).
- [13] J.F. Dillon, jr., J.W. Nielsen. Phys. Rev. Lett. 3, 1, 30 (1959).
- [14] A.G. Gurevich, A.N. Ageev, M.I. Klinger. J. Appl. Phys. 41, 3, 1295 (1970).
- [15] R. Pauthenet. J. Appl. Phys. 30, 4, 290S (1959).
- [16] Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела. Наука, М. (1978). 791 с.