

ISSN 0367-6765

Том 87, Номер 4

Апрель 2023



ИЗВЕСТИЯ РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

СЕРИЯ ФИЗИЧЕСКАЯ



www.sciencejournals.ru

В журнале "Известия Российской академии наук. Серия физическая" публикуются полнотекстовые статьи, подготовленные по материалам лучших докладов, рекомендованных программными комитетами научных конференций, симпозиумов и совещаний, созываемых Российской академией наук.



СОДЕРЖАНИЕ

Том 87, номер 4, 2023

Фундаментальные проблемы и тенденции в магнетизме

Магнитные свойства нано- и микроразмерного кристаллических порошков тетрафторида лития–тербия

Г. Ю. Андреев, И. В. Романова, С. Л. Кораблева, О. А. Морозов, А. С. Семакин, А. Г. Киямов, М. С. Тагиров 462

Моделирование сверхпроводящего триплетного спинового клапана с несколькими слоями сверхпроводника

Р. Р. Гайфуллин, Р. Г. Деминов, В. Н. Кушнир, М. Ю. Куприянов, А. А. Голубов, Л. Р. Тагиров 468

СВЧ переключения в магнитной и упругой подсистемах трехслойной магнитной структуры

Л. Н. Котов, М. Ю. Дианов, В. С. Власов, В. В. Миронов 473

Электронные свойства сплавов Mn_3Z ($Z = Ga, Ge$): исследования из первых принципов

М. А. Обамби, М. А. Загребин, В. Д. Бучельников 481

Влияние гидрирования на структуру и магнитные свойства соединений $Tb(Fe,Co)_{11}Ti$

А. А. Макурenkova, М. В. Железный, Н. Ю. Панкратов, Е. С. Козлякова, И. С. Терёшина, С. А. Никитин 485

Исследование эффектов магнитной анизотропии в трехслойных металлических наноструктурах на основе пленок железа

М. Ю. Макеев, М. В. Мамонова 493

Отрицательная анизотропия в пленках $Ni-Fe$

П. А. Савин, О. А. Аданакoва, В. Н. Лепаловский, Е. В. Кудюков, В. О. Васьковский 500

Перемагничивание продольно намагниченной пленки с кубической анизотропией магнитными импульсами

В. Н. Шапоров, Л. Н. Котов, В. С. Власов 504

Стабильность скирмионного кристалла в фрустрированном антиферромагнитном бислое на треугольной решетке

И. Ф. Шарафуллин, А. Г. Нугуманов, А. Х. Баишева, А. Р. Юлдашева, Х. Т. Диеп 511

Фундаментальные проблемы физики функциональных материалов

Исследование особенностей сверхпроводящего спинового клапана на базе Fe/Nb

А. А. Камашев, А. А. Валидов, Н. Н. Гарифьянов, И. А. Гарифуллин 518

Создание и исследование тонкопленочных гетероструктур на базе Fe/Nb

А. А. Валидов, М. И. Насырова, Р. Р. Хабибуллин, И. А. Гарифуллин 523

Контроль за вектором намагниченности ферромагнитного слоя в двухслойных гетероструктурах ферромагнетик/сегнетоэлектрик

А. А. Камашев, А. В. Леонтьев, И. А. Гарифуллин, Р. Ф. Мамин 530

Фотосопротивление пленочной гетероструктуры $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3/LaMnO_3/Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3/MgO$

А. О. Чибирев, А. В. Леонтьев, Т. М. Салихов, Р. Ф. Мамин 534

Проводимость пленочной гетероструктуры $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3/LaMnO_3/Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$

А. О. Чибирев, А. В. Леонтьев, М. И. Банников, Р. Ф. Мамин 538

Свойства перколяционных каналов в планарных мемристивных структурах на основе эпитаксиальных пленок оксидных перовскитных соединений $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ и $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$ <i>А. Н. Россоленко, Н. А. Тулина, И. М. Шмытько, А. А. Иванов, А. В. Зотов, И. Ю. Борисенко, В. В. Сироткин, В. А. Тулин</i>	541
Фазовые переходы в твердых растворах $\text{Na}(\text{Nb}_{0.9}\text{Me}_{0.1})\text{O}_{3-\delta}$ ($\text{Me} = \text{Bi}, \text{Fe}$) <i>Н. М. Оспельников, Е. В. Барабанова</i>	546
Влияние кислородных вакансий на электронные свойства гетероструктуры $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$ <i>И. И. Гумарова, Р. Ф. Мамин</i>	550
Перенос носителей заряда и поляризация в структурах $\text{M}/\text{PZT}/\text{M}$ <i>Л. А. Делимова, В. С. Юферев</i>	555
<i>Ab initio</i> исследование электронных свойств гетероструктуры BaTiO_3/Si <i>А. Э. Загидуллина, И. И. Гумарова, А. А. Евсеев, Р. Ф. Мамин</i>	562
Особенности магнетизма в $\text{Dy}_{1-x}\text{Ho}_x\text{MnO}_3$ <i>А. Н. Матвеева, И. А. Зобкало, А. Г. Пшеничная</i>	567
Механический отклик аморфного металлического сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ при одноосной деформации <i>Б. Н. Галимзянов, М. А. Доронина, А. В. Мокшин</i>	573
Исследование гетероструктур на основе оксида гафния <i>Я. И. Шарифуллина, И. И. Гумарова, Р. Ф. Мамин, О. В. Недопекин</i>	580

Волновые явления: физика и применения

Когерентность излучения мощных лазерных диодов и их спектрально-пространственные характеристики <i>А. Г. Ржанов</i>	588
Влияние геометрических параметров двухсекционных осесимметричных сверхразмерных релятивистских дифракционных генераторов на их выходные характеристики <i>О. В. Галлямова, С. В. Худяков</i>	592
Формирование и применение голограммы широкополосного источника звука в океанических волноводах <i>В. М. Кузькин, С. А. Пересёлков</i>	598
Аналитическое решение для дифрагирующего интенсивного гауссовского пучка в рамках модели модульной нелинейности <i>В. А. Гусев, Д. А. Жарков</i>	604

Contents

Vol. 87, No. 4, 2023

Fundamental Problems and Trends in Magnetism

Magnetic properties of nano- and micro-sized crystalline powders of terbium–lithium tetrafluoride <i>G. Iu. Andreev, I. V. Romanova, S. L. Korableva, O. A. Morozov, A. S. Semakin, A. G. Kiiamov, M. S. Tagirov</i>	462
Modeling of the superconducting triplet spin valve with several superconductor layers <i>R. R. Gaifullin, R. G. Deminov, V. N. Kushnir, M. Yu. Kupriyanov, A. A. Golubov, L. R. Tagirov</i>	468
Microwave switching in the magnetic and elastic subsystems of a three-layer magnetic structure <i>L. N. Kotov, M. Yu. Dianov, V. S. Vlasov, V. V. Mironov</i>	473
Electronic properties of the Mn_3Z ($Z = Ga, Ge$) alloys: first-principles studies <i>M. A. Obambi, M. A. Zagrebin, V. D. Buchelnikov</i>	481
Effect of hydrogenation on the structure and magnetic properties of $Tb(Fe,Co)_{11}Ti$ compounds <i>A. A. Makurenkova, M. V. Zhelezny, N. Y. Pankratov, E. S. Kozlyakova, I. S. Tereshina, S. A. Nikitin</i>	485
Investigation of magnetic anisotropy effects in trilayer metal nanostructures based on iron film <i>M. Yu. Makeev, M. V. Mamonova</i>	493
Negative anisotropy in Ni–Fe films <i>P. A. Savin, O. A. Adanakova, V. N. Lepalovskij, E. V. Kudyukov, V. O. Vas'kovskiy</i>	500
Magnetization reversal of the longitudinally magnetized film with cubic anisotropy by magnetic pulses <i>V. N. Shaporov, L. N. Kotov, V. S. Vlasov</i>	504
Stability of a skyrmion crystal in a frustrated antiferromagnetic bilayer on a triangular lattice <i>I. F. Sharafullin, A. G. Nugumanov, A. H. Baisheva, A. R. Yuldasheva, H. T. Diep</i>	511

Fundamental Problems of the Physics of Functional Materials

Investigation of the features of superconducting spin valve based on Fe/Nb <i>A. A. Kamashev, A. A. Validov, N. N. Garifyanov, I. A. Garifullin</i>	518
Creation and investigation of thin-film heterostructures based on Fe/Nb <i>A. A. Validov, M. I. Nasyrova, R. R. Khabibullin, I. A. Garifullin</i>	523
Control of the direction of magnetization of a ferromagnetic layer in two-layer heterostructure ferromagnet/ferroelectric <i>A. A. Kamashev, A. V. Leontyev, I. A. Garifullin, R. F. Mamin</i>	530
Photoresistance of a film heterostructure $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3/LaMnO_3/Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3/MgO$ <i>A. O. Chibirev, A. V. Leontyev, T. M. Salikhov, R. F. Mamin</i>	534
Conductivity of a film heterostructure $Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3/LaMnO_3/Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO_3$ <i>A. O. Chibirev, A. V. Leontyev, M. I. Bannikov, R. F. Mamin</i>	538
Properties of percolation channels in planar memristive structures based on epitaxial films of oxide perovskite compounds $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ и $La_{1-x}Sr_xMnO_{3-\delta}$ <i>A. N. Rossolenko, N. A. Tulina, I. M. Shmytko, A. A. Ivanov, A. V. Zotov, I. Y. Borisenko, V. V. Sirotkin, V. A. Tulin</i>	541

Phase transitions in $\text{Na}(\text{Nb}_{0.9}\text{Me}_{0.1})\text{O}_{3-\delta}$ (Me = Bi, Fe) solid solutions <i>O. N. Ospelnikov, E. V. Barabanova</i>	546
Effect of oxygen vacancies on the electronic properties of the $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$ heterostructure <i>I. I. Gumarova, R. F. Mamin</i>	550
Charge carrier transport and polarization in M/PZT/M structures <i>L. A. Delimova, V. S. Yuferev</i>	555
<i>Ab initio</i> study of heterostructure BaTiO_3/Si <i>A. E. Zagidullina, I. I. Gumarova, A. A. Evseev, R. F. Mamin</i>	562
Special features of magnetism in $\text{Dy}_{1-x}\text{Ho}_x\text{MnO}_3$ <i>A. N. Matveeva, I. A. Zobkalo, A. G. Pshenichnaia</i>	567
Mechanical response of amorphous $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ metallic alloy under uniaxial deformation <i>B. N. Galimzyanov, M. A. Doronina, A. V. Mokshin</i>	573
Investigation of heterostructures based on hafnium oxide <i>Y. I. Sharifullina, I. I. Gumarova, R. F. Mamin, O. V. Nedopekin</i>	580

Wave Phenomena: Physics and Applications

Coherence of high-power laser diodes radiation and their spectral-spatial characteristics <i>A. G. Rzhanov</i>	588
Effect of geometric parameters of two-section axisymmetric overdimensional relativistic diffraction generators on their output characteristics <i>O. V. Gallyamova, S. V. Khudyakov</i>	592
Broadband sound source hologram formation and application in oceanic waveguides <i>V. M. Kuz'kin, S. A. Pereselkov</i>	598
Analytical solution for the diffracting intense gaussian beam in the framework of a modular nonlinearity model <i>V. A. Gusev, D. A. Zharkov</i>	604

Фундаментальные проблемы и тенденции в магнетизме

Редакторы тематического выпуска
докт. физ.-мат. наук **Е. В. Мостовщикова**
докт. физ.-мат. наук **З. В. Гареева**
канд. физ.-мат. наук **Т. П. Гаврилова**

УДК 537.9.621

МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА НАНО- И МИКРОРАЗМЕРНОГО КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПОРОШКОВ ТЕТРАФТОРИДА ЛИТИЯ–ТЕРБИЯ

© 2023 г. Г. Ю. Андреев^{1, *}, И. В. Романова¹, С. Л. Кораблева¹, О. А. Морозов^{1, 2}, А. С. Семакин¹, А. Г. Киямов¹, М. С. Тагиров^{1, 3}

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования “Казанский (Приволжский) федеральный университет”, Институт физики, Казань, Россия

²Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр “Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, 420029 Россия

³Государственное научное бюджетное учреждение “Академия наук Республики Татарстан”, Институт прикладных исследований, Казань, Россия

*E-mail: ujif28@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Синтезированы микроразмерный и наноразмерный порошки тетрафторида тербия. Наблюдалось уменьшение температуры Кюри у наноразмерного образца: $T_C = 2.88(4)$ К для микроразмерного порошка, $T_C = 2.78(4)$ К для наноразмерного порошка. Измерены и смоделированы полевые зависимости намагниченности микроразмерного образца в магнитных полях до 9 Тл при температурах от 2 до 300 К.

DOI: 10.31857/S0367676522700806, EDN: NKEAIP

ВВЕДЕНИЕ

Редкоземельные тетрафториды, или двойные фториды LiRF_4 ($R = \text{Y, Gd–Lu}$) применяются в фотонике, квантовой электронике, квантовых вычислениях, лазерной технике [1, 2], криогенной технике для космических аппаратов [3]. Эти соединения также важны для физики дипольного магнетизма [4] и квантовых фазовых переходов [5]. Кристаллическая структура LiRF_4 группы симметрии $I4_1/a$ аналогична структуре шеелита CaWO_4 . Элементарная ячейка кристалла содержит два редкоземельных иона в магнитоэквивалентных позициях с окружением симметрии S_4 , которые образуют две магнитных подрешетки [4, 6, 7]. Магнитоконцентрированный двойной фторид LiTbF_4 является изинговским дипольным ферромагнетиком, в котором магнитные моменты ионов упорядочиваются вдоль направления [001] кристаллической решетки; температура Кюри для LiTbF_4 $T_C = 2.8741(16)$ К [8]. Анализ полевых и температурных зависимостей намагниченности монокристалла LiTbF_4 при температурах от 2 до 300 К в магнитных полях до 5 Тл позволил определить параметры кристаллического поля [9]. Магнитоупругие взаимодействия, спонтанная и вынужденная магнитострикция монокристаллов LiTbF_4 в ферромагнитной и парамаг-

нитной фазах в полях до 2.25 Тл исследованы в работе [10]. Подробный обзор магнитных свойств тетрафторида тербия и сравнение со свойствами других редкоземельных тетрафторидов даны в работах [9, 11].

В данной работе использовались поликристаллические образцы (кристаллические порошки), так как сильное магнитное поле может приводить к разрушению образца, вследствие дефектов в структуре, возникающих при росте монокристалла. К тому же, двойные фториды обладают выраженной магнитной анизотропией. Так, значение g -фактора для тетрафторида LiTbF_4 вдоль оси [001] составляет $g_{\parallel} = 17.85(10)$ [12], а в плоскости (001) $g_{\perp} \approx 0$. Продольная магнитострикция монокристалла LiTbF_4 в направлениях [001] и [100] отличается на порядок и различается по знаку ($-3.5 \cdot 10^{-5}$ и $3 \cdot 10^{-6}$ соответственно, при $T = 1.6$ К и $B = 2$ Тл) [10]. Приложение магнитного поля $B = 5$ Тл перпендикулярно оси легкого намагничивания, т. е. в плоскости (001), создает крутящий момент на один ион Tb^{3+} $T = 108 \mu_B$, стремящийся развернуть монокристалл легкой осью намагничивания вдоль направления внешнего магнитного поля, что также может привести к разрушению монокристаллического образца в приложенном сильном магнитном поле.

Также влияние размера наночастиц на магнитные, оптические и электронные свойства фторидов является одной из фундаментальных проблем физики редкоземельных соединений. Данная работа является логическим продолжением исследования магнитных свойств наноразмерных порошков двойных фторидов [13].

СИНТЕЗ ОБРАЗЦОВ

Наноразмерный порошок тетрафторида тербия получен методом гидротермального синтеза в автоклаве с использованием среды вода – этанол – олеиновая кислота [14]. Характеризация наноразмерного образца проводилась методами рентгеноструктурного анализа и просвечивающей электронной микроскопии; данные исследования позволили определить средний размер наночастиц: 37.0(4) нм. Изображение синтезированных частиц, полученное на просвечивающем электронном микроскопе, представлено на рис. 1а.

Микроразмерный порошок LiTbF_4 синтезирован спеканием порошков фторида лития (99.99%) и трифторида тербия (99.99%), взятых в соотношении согласно фазовой диаграмме [7, 15]. Прекурсоры сушили два часа в стеклографитовом тигле при температуре 150°C и давлении $4 \cdot 10^{-3}$ Па. Спекание проводилось в том же самом тигле в течение 18 ч при температуре 600°C в атмосфере аргона. Характеризация микроразмерного образца проводилась методами рентгеноструктурного анализа, энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии и сканирующей электронной микроскопии. Согласно изображениям, полученным на сканирующем электронном микроскопе (пример на рис. 1б), размер частиц составляет порядка 1 мкм.

Кристаллическая структура наноразмерного и микроразмерного образцов LiTbF_4 соответствует литературным данным для монокристалла тетрафторида тербия [6]; параметры ячейки $a = 5.20(3)$ нм, $c = 10.91(3)$ нм для наноразмерного образца; $a = 5.20(3)$ нм, $c = 10.90(3)$ нм для микроразмерного образца. Расчеты проведены с помощью программного обеспечения MAUD [16] по данным из [6] и Crystallography Open Database [17], запись № 1531435.

ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

При теоретическом анализе экспериментальных данных в рамках модели обменных зарядов использовался метод диагонализации гамильтониана $\hat{H}$ редкоземельного иона в полном базисе состояний свободного иона (3003 состояния) [9]:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{Zee} + \hat{H}_{cf} + \hat{H}_{ed}. \quad (1)$$

$\hat{H}_0$ – энергия свободного иона [18].

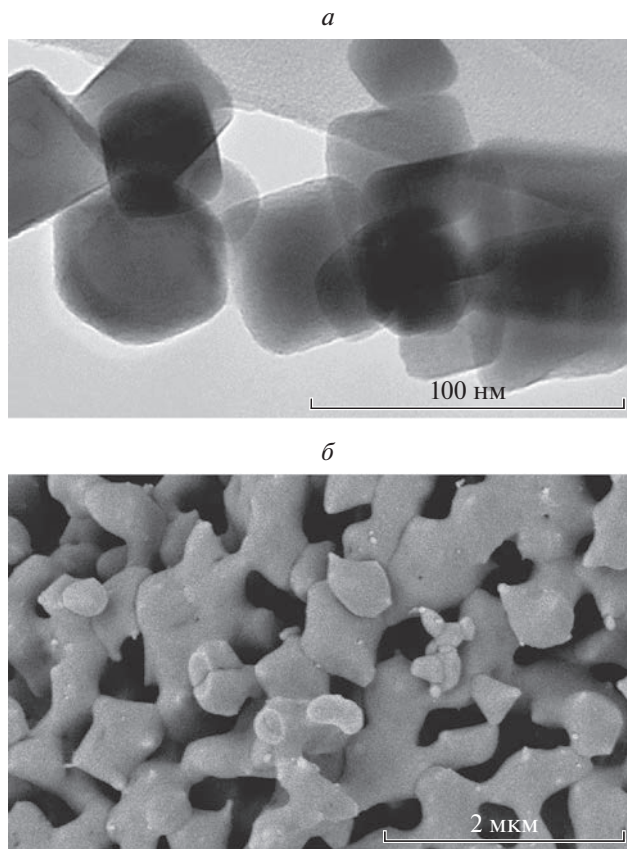


Рис. 1. Наноразмерные частицы LiTbF_4 . Изображение получено с помощью просвечивающего электронного микроскопа. Цена деления масштабной линейки 20 нм (а). Микроразмерные частицы LiTbF_4 . Изображение получено с помощью сканирующего электронного микроскопа (б).

$\hat{H}_{Zee}$ – электронное зеемановское взаимодействие:

$$\hat{H}_{Zee} = \mu_B \vec{B}_{loc} \hat{J} \quad (2)$$

μ_B – магнетон Бора, $\hat{J}$ – оператор полного момента, $\vec{B}_{loc}$ – локальное магнитное поле:

$$\vec{B}_{loc}(s) = \vec{B} + \sum_l \vec{\mu}(l)(Q(s,l) - 4\pi N_m/3v); \quad (3)$$

$\vec{B}$ – внешнее магнитное поле, $\vec{\mu}(l)$ – магнитный момент редкоземельного иона; s и l – индексы подрешеток; $Q(s,l)$ – решеточные суммы, рассчитанные по методу Эвальда; v – объем элементарной ячейки, N_m – фактор размагничивания. В данной работе частицы считались сферическими, поэтому фактор размагничивания является скалярной величиной и $N_m = 1$.

$\hat{H}_{cf}$ – кристаллическое поле симметрии S_4 :

$$\hat{H}_{cf} = \sum_{k,p} B_k^p \hat{O}_k^p. \quad (4)$$

Таблица 1. Значения параметров кристаллического поля B_k^p в монокристалле LiTbF_4 [9] и констант электрон-деформационного взаимодействия $B_{k,\eta}^p(\Gamma^v)$ [20, 21] (в см^{-1})

	B_2^0	B_4^0	B_4^4	B_4^{-4}	B_6^0	B_6^4	B_6^{-4}	
	200	−100.5	−694	−829	−2	−435	−283	
j	$B_2^0(A_g^j)$	$B_4^0(A_g^j)$	$B_4^4(A_g^j)$	$B_4^{-4}(A_g^j)$	$B_6^0(A_g^j)$	$B_6^4(A_g^j)$	$B_6^{-4}(A_g^j)$	
1	350	140	2300	1550	90	700	300	
2	−900	500	2400	795	−50	1300	1100	
j	$B_2^2(B_g^j)$	$B_2^{-2}(B_g^j)$	$B_4^2(B_g^j)$	$B_4^{-2}(B_g^j)$	$B_6^2(B_g^j)$	$B_6^{-2}(B_g^j)$	$B_6^6(B_g^j)$	$B_6^{-6}(B_g^j)$
1	1644	1846	−454	1885	188	−543	−858	−738
2	3814	−836	−1532	1424	−243	−658	−1444	−1245

$\hat{O}_k^p$ — операторы-эквиваленты Стивенса [19]. Используемый набор значений параметров кристаллического поля B_k^p представлен в табл. 1.

$\hat{H}_{ed}$ — электрон-деформационное взаимодействие:

$$\hat{H}_{ed} = \sum_{\alpha\beta} \hat{V}_{\alpha\beta} e_{\alpha\beta} + \sum_{\alpha s} \hat{V}_{\alpha}(s) w_{\alpha}(s). \quad (5)$$

Здесь первая сумма отвечает за взаимодействие редкоземельного иона с макродеформациями ($e_{\alpha\beta}$ — компоненты тензора деформаций), вторая — за взаимодействие с микродеформациями ($w_{\alpha}(s)$ — смещения подрешеток). Операторы $\hat{V}_{\alpha\beta}$ и $\hat{V}_{\alpha}(s)$ являются линейными комбинациями упомянутых выше операторов-эквивалентов $\hat{O}_k^p$:

$$\hat{V}_{\alpha\beta} = \sum_{kp} B_{k,\alpha\beta}^p \hat{O}_k^p, \quad (6)$$

$$\hat{V}_{\alpha}(s) = \sum_{kp} D_{k,\alpha}^p(s) \hat{O}_k^p. \quad (7)$$

Симметрия кристаллической решетки предполагает следующие линейные комбинации компонентов тензора деформации:

$$e(A_g^1) = e_{zz}, \quad (8)$$

$$e(A_g^2) = 0.5 \cdot (e_{xx} + e_{yy}), \quad (9)$$

$$e(B_g^1) = e_{xx} - e_{yy}, \quad (10)$$

$$e(B_g^2) = e_{xy}, \quad (11)$$

$$e(E_g^1) = e_{xz}, \quad (12)$$

$$e(E_g^2) = e_{yz}. \quad (13)$$

Эти комбинации преобразуются по неприводимым представлениям $\Gamma = A_g, B_g, E_g$ группы симметрии S_4 . Магнитное поле, приложенное вдоль направления $[001]$, вызывает только полносимметричные деформации A_g , а приложенное в плоскости (001) — полносимметричные и ромбические деформации B_g . В базисе симметризованных деформаций энергия электрон-деформационного взаимодействия (5) выглядит следующим образом [20]:

$$\hat{H}_{ed} = \sum_{\Gamma v \eta} \sum_{kp} \hat{O}_k^p [B_{k,\eta}^p(\Gamma^v) e_{\eta}(\Gamma^v) + D_{k,\eta}^p(\Gamma^v) w_{\eta}(\Gamma^v)]. \quad (14)$$

Используемый набор значений констант электрон-деформационного взаимодействия $B_{k,\eta}^p(\Gamma^v)$ приведен в табл. 1, констант $D_{k,\eta}^p(\Gamma^v)$ — в табл. 2.

Намагниченность M (магнитный момент на единицу массы образца), усредненную по всем возможным направлениям кристалла относительно направления $\vec{B}$ можно найти по формуле

$$M = (N_A \mu_B g_L) / (4\pi m) \int_0^{2\pi} d\varphi \times \int_0^{\pi} d\theta \text{Sp}(\hat{J} \cdot \vec{e}_B \exp(\beta \hat{H})) / Z. \quad (15)$$

Здесь N_A — постоянная Авогадро, g_L — фактор Ланде, m — молярная масса соединения, $\vec{e}_B = \vec{B}/|\vec{B}|$, $Z = \text{Sp}(\exp(\beta \hat{H}))$, $\beta = (k_B T)^{-1}$, k_B — константа Больцмана, T — температура, $\text{Sp}(\dots)$ — след матрицы, сумма ее диагональных элементов.

Таблица 2. Значения эффективных постоянных связи с внутренними деформациями (в см^{-1}) [20]

j	$D_2^2(B_g^j)$	$D_2^{-2}(B_g^j)$	$D_4^2(B_g^j)$	$D_4^{-2}(B_g^j)$	$D_6^2(B_g^j)$	$D_6^{-2}(B_g^j)$	$D_6^6(B_g^j)$	$D_6^{-6}(B_g^j)$
1	−2329	30	11 365	−34 305	91	−1510	8774	−1662
2	−21 087	643	−3365	−4413	2120	−6452	4666	4064
3	−6566	17977	−6867	8738	−996	−1864	4168	−4088
4	13904	−44934	98	−10996	1606	−4525	−10852	4206
5	363	−1816	5	65	−11	87	−117	−30

РЕЗУЛЬТАТЫ

Намагниченность образцов измерялась на вибрационном магнитометре VSM установки Physical Property Measurement System (PPMS®) в пределах температур 2–300 К и приложенных статических магнитных полей до 9 Тл.

На рис. 2а приведены измерения температурной зависимости намагниченности в магнитном поле $B = 10$ мТл. Температура перехода в магни-

тоупорядоченное состояние определена как минимум аппроксимации производной намагниченности по температуре (рис. 2б и 2в). Для наноразмерного порошка проведена аппроксимация функцией Гаусса, для микроразмерного порошка – рядом Грама–Шарлье [22]. Температура Кюри микроразмерного порошка $T_C = 2.88(4)$ К, что согласуется с литературными данными для монокристалла LiTbF_4 $T_C = 2.8741(16)$ К [8]; но

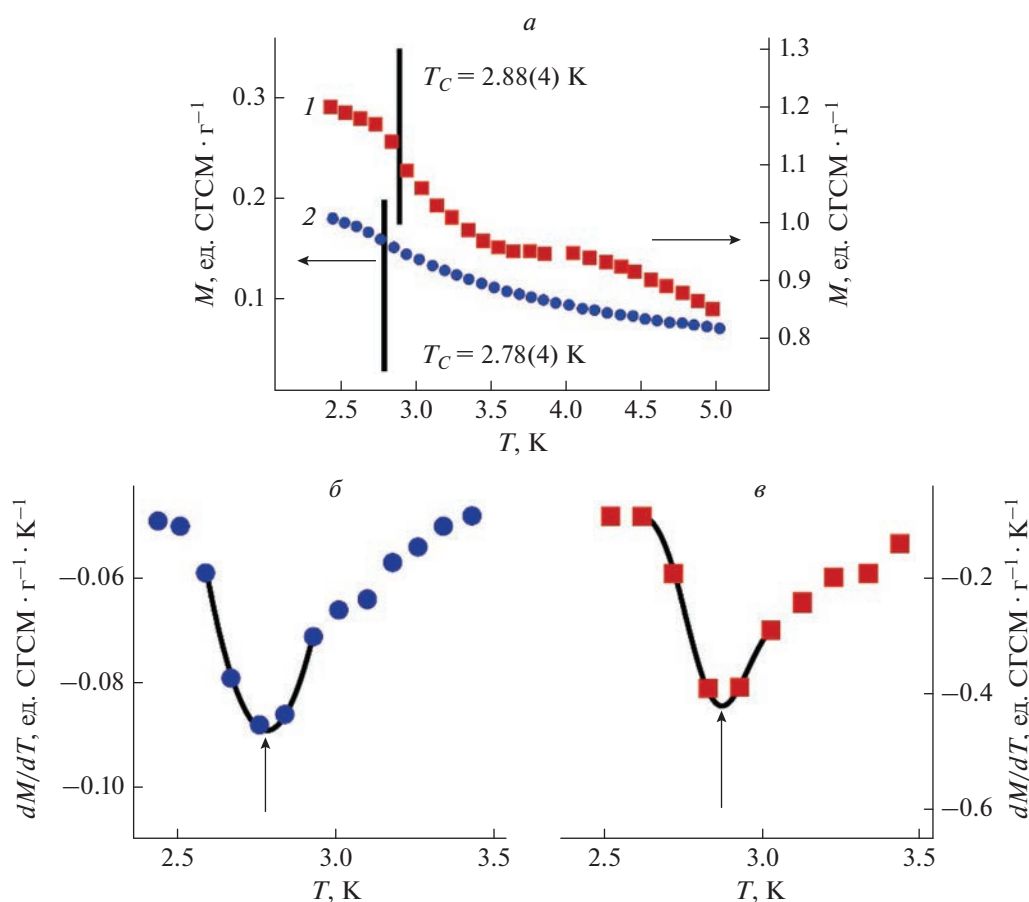


Рис. 2. Температурная зависимость намагниченности M образцов LiTbF_4 в слабом магнитном поле ($B = 10$ мТл). 1 – микроразмерный порошок, 2 – наноразмерный порошок (а). Производная намагниченности по температуре dM/dT для наноразмерного образца LiTbF_4 (б). Производная намагниченности по температуре dM/dT для микроразмерного образца LiTbF_4 . Стрелка указывает на минимум математической аппроксимации производной намагниченности по температуре (в).

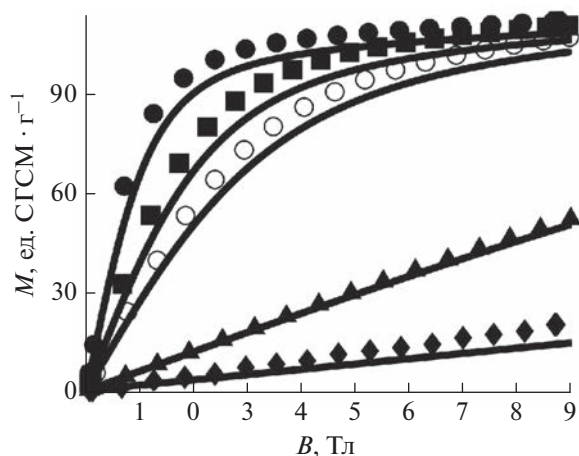


Рис. 3. Полевые зависимости намагниченности M микроразмерного порошка LiTbF_4 при различных температурах: $\bullet$ – 5; $\blacksquare$ – 10; $\circ$ – 15; $\blacktriangle$ – 77; $\blacklozenge$ – 300 К. Символами обозначены измерения, линиями – расчеты.

для образца наноразмерного порошка LiTbF_4 наблюдается заметное уменьшение температуры Кюри: $T_C = 2.78(4)$ К. Приповерхностный слой кристаллических частиц неизбежно содержит большое количество дефектов и неоднородностей [23], что изменяет расщепление основного мультиплета кристаллическим электрическим полем.

В приближении самосогласованного поля, температура Кюри зависит от расщепления δ основного квазидублета иона Tb^{3+} [9]:

$$1 = \lambda (v\delta)^{-1}. \quad (16)$$

Здесь $\lambda = v(g\mu_B)^{-2} \sum_j J_{ij} = 4.36 \text{ см}^{-1}$ – постоянная обменного поля, J_{ij} – обменные интегралы, определяющие взаимодействие ионов Tb^{3+} с ближайшими ионами тербия, а также и со следующими за ними четырьмя ионами тербия, полученные из анализа данных по квазиупругому рассеянию нейтронов в работе [24]. Для уменьшения T_C на величину 0.1 К достаточно увеличения δ с 1.0 см^{-1} до 1.7 см^{-1} . Это значение расщепления можно подобрать изменением значений параметров кристаллического поля (табл. 1): уменьшением B_2^0 на 45 см^{-1} или увеличением B_4^0 на 60 см^{-1} , согласно результатам моделирования.

Эффекты в приповерхностном слое становятся заметными при сравнимом объеме его и внутреннего объема частицы [25, 26]. По нашим оценкам, это достигается при размерах частицы порядка 5–50 нм, если принять толщину приповерхностного слоя в пределах от 1 до 10 нм. С другой стороны, уменьшение объема частицы означает уменьше-

ние числа магнитных моментов, и тепловым флуктуациям легче разрушить упорядоченное состояние магнитной системы, и это также может вызвать уменьшение температуры Кюри.

Измерения полевых зависимостей намагниченности микроразмерного порошка двойного фторида LiTbF_4 при различных температурах представлены на рис. 3 вместе с расчетами, приведенными по формуле (15).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Это первое исследование магнитных свойств наноразмерного образца редкоземельного тетрафторида тербия. Наблюдаемое уменьшение температуры Кюри наноразмерного порошка LiTbF_4 относительно микроразмерного порошка этого соединения на 0.10(8) К и относительно литературных данных о монокристалле LiTbF_4 говорит о размерном мезоскопическом эффекте.

Авторы благодарят Б.З. Малкина за обсуждение результатов.

Исследование выполнено при поддержке Российского научного фонда (проект № 22-22-00257).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Семашко В.В., КорABLEVA С.Л., Федоров П.П. // Неорг. матер. 2022. Т. 58. № 5. С. 467; Semashko V.V., Korableva S.L., Fedorov P.P. // Inorg. Mater. 2022. V. 58. No. 5. P. 447.
2. Vojna D., Slezvák O., Lucianetti A., Mocek T. // Appl. Sci. 2019. V. 9. No. 15. P. 3160.
3. Shirron P., Canavan E., DiPirro M. et al. // Cryogenics. 2004. V. 44. No. 6–8. P. 581.
4. Aminov L.K., Malkin B.Z., Teplov M.A. // in: Handbook on the physics and chemistry of rare earths. V. 22. Elsevier Science B.V., 1996. P. 296.
5. McKenzie R.D., Stamp P.C.E. // Phys. Rev. B. 2018. V. 97. No. 21. Art. No. 214430.
6. Keller C., Schmutz H. // J. Inorg. Nucl. Chem. 1965. V. 4. No. 4. P. 900.
7. Thoma R.E., Brunton G.D., Penneman R.A., Keenan T.K. // Inorg. Chem. 1970. V. 9. No. 5. P. 1096.
8. Als-Nielsen J., Holmes L.M., Krebs Larsen F., Guggenheim H.J. // Phys. Rev. B. 1975. V. 12. No. 1. P. 191.
9. Romanova I.V., Tagirov M.S. // Magn. Reson. Solids. 2019. V. 21. No. 4. Art. No. 19412.
10. Кротов В.И., Малкин Б.З., Муттельман А.А. // ФТТ. 1982. Т. 24. No. 2. С. 542.
11. Babkevich P., Finco A., Jeong M. // Phys. Rev. B. 2015. V. 92. No. 14. Art. No. 144422.
12. Magariño J., Tüchendler J., Beauvillain P., Laursen I. // Phys. Rev. B. 1980. V. 21. No. 1. P. 18.
13. Alakshin E.M., Klochkov A.V., Korableva S.L. et al. // Magn. Reson. Solids. 2016. V. 18. No. 4. Art. No. 19412.
14. Zhang Q., Yan B. // Inorg. Chem. 2010. V. 49. No. 15. P. 6834.

15. Федоров П.П., Семашко В.В., Кorableва С.Л. // Неорг. матер. 2022. Т. 58. № 3. С. 235.
16. Lutterotti L., Matthies S., Wenk H.-R. et al. // J. Appl. Phys. 1997. V. 81. P. 594.
17. Semashko V.V., Korableva S.L., Fedorov P.P. // Inorg. Mater. 2022. V. 58. No. 3. P. 447.
18. Carnall W.T., Goodman G.L., Rajnak K., Rana R.S. // J. Chem. Phys. 1989. V. 90. No. 7. P. 3443.
19. Mollabashi L., Jalali-Asadabadi S. // Phys. Rev. B. 2020. V. 102. No. 4. Art. No. 045120.
20. Аминов Л.К., Малкин Б.З. Динамика и кинетика электронных и спиновых возбуждений в парамагнитных кристаллах. Казань, 2008. 182 с.
21. Bertaina S., Barbara B., Giraud R. et al. // Phys. Rev. B. 2006. V. 74. No. 16. Art. No. 184421.
22. Кендалл М., Стьюарт А. Теория распределений. М.: Наука. ГРФМЛ, 1966. 588 с.
23. Klochov A.V., Kurzin S.P., Mukhamedshin I.R. et al. // Appl. Magn. Reson. 1996. V. 14. P. 525.
24. Holmes L.M., Als-Nielsen J., Guggenheim H.J. // Phys. Rev. B. 1975. V. 12. No. 1. P. 180.
25. Никифоров В.И., А.Н. Игнатенко А.Н., Ирхин В.Ю. // ЖЭТФ. 2017. Т. 151. № 2. С. 356; Nikiforov V.N., Ignatenko A.N., Irkhin V.Yu. // J. Exp. Theor. Phys. 2017. V. 124. No. 2. P. 304.
26. Alakshin E., Kondratyeva E., Garaeva A. et al. // Nanoscale. 2022. V. 14. No. 31. Art. No. 11353.

Magnetic properties of nano- and micro-sized crystalline powders of terbium–lithium tetrafluoride

**G. Iu. Andreev^{a,*}, I. V. Romanova^a, S. L. Korableva^a, O. A. Morozov^{a,b},
A. S. Semakin^a, A. G. Kiiamov^a, M. S. Tagirov^{a,c}**

^a Kazan Federal University, Institute of Physics, Kazan, 420008 Russia

^b Federal Research Center “Kazan Scientific Center of the Russian Academy of Sciences”,
Zavoisky Physical-Technical Institute, Kazan, 420029 Russia

^c Tatarstan Academy of Sciences, Institute of Applied Research, Kazan, 420111 Russia

*e-mail: ujif28@mail.ru

Microsized and nanosized powders of terbium tetrafluoride were synthesized. The decrease of Curie temperature of the nanosized sample was observed: $T_C = 2.88(4)$ K for the microsized sample, $T_C = 2.78(4)$ K for the nanosized sample. The field dependences of the magnetization of the microsized sample in magnetic fields up to 9 T at temperatures from 2 to 300 K were measured and calculated.

УДК 538.945:538.915

МОДЕЛИРОВАНИЕ СВЕРХПРОВОДЯЩЕГО ТРИПЛЕТНОГО СПИНОВОГО КЛАПАНА С НЕСКОЛЬКИМИ СЛОЯМИ СВЕРХПРОВОДНИКА

© 2023 г. Р. Р. Гайфуллин^{1, *}, Р. Г. Деминов¹, В. Н. Кушнир^{2, 3},
М. Ю. Куприянов⁴, А. А. Голубов⁵, Л. Р. Тагиров^{1, 6}

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
“Казанский (Приволжский) федеральный университет” Институт физики, Казань, Россия

²Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники, Минск, Беларусь

³Белорусский государственный университет, Кафедра теоретической физики и астрофизики, Минск, Беларусь

⁴Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова”,

Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д.В. Скобельцына, Москва, Россия

⁵Университет Твенте, Институт нанотехнологий MESA+, Факультет науки и технологий, Энсхеде, Нидерланды

⁶Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

*E-mail: gaifullin.rashid@gmail.com

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

С помощью матричного метода решения линеаризованных уравнений Узалея получена критическая температура и распределение синглетных компонент спаривания структуры сверхпроводник/ферромагнетик/сверхпроводник/ферромагнетик с неидеальными границами. Получен переход из π - в 0-фазовое состояние между слоями сверхпроводников при изменении угла между намагниченностями ферромагнитных слоев в такой структуре.

DOI: 10.31857/S0367676522700831, EDN: NKTWTF

ВВЕДЕНИЕ

Исследуется критическая температура перехода в сверхпроводящее состояние T_k и распределение синглетных компонент сверхпроводящего спаривания симметричных С/Ф/С, асимметричных С1/Ф/С2 и С1/Ф1/С2/Ф2 гетероструктур (С – синглетный сверхпроводник, Ф – ферромагнитный металл) с неидеальными границами, в которых дальнедействующая триплетная сверхпроводящая компонента генерируется при неколлинеарных направлениях намагниченностей ферромагнитных слоев [1]. Ранее было показано, что критическая температура трехслойной С/Ф1/Ф2 гетероструктуры [2] может быть немонотонной функцией угла α между намагниченностями ферромагнитных слоев, в отличие от монотонного поведения $T_k(\alpha)$ в трехслойной Ф1/С/Ф2 гетероструктуре [3]. В работе [4] рассмотрено влияние дополнительного слоя сверхпроводника и дополнительного слоя нормального металла между ферромагнитными слоями на прямой и триплетный режи-

мы спинного вентиля при изменении толщин этих слоев в приближении идеальных границ: параметр квантово-механической прозрачности границы $\gamma_T = 0$, константы диффузии и удельные сопротивления слоев одинаковы. В данной работе рассматривается влияние дополнительного слоя сверхпроводящего металла с параметрами материалов и границ из работы [5]. Поэтому данное исследование актуально как для моделирования и определения параметров реальных структур, так и выявления особенностей в их поведении.

МОДЕЛЬ И ЧИСЛЕННЫЙ МЕТОД

Первоначально зависимости критической температуры T_k симметричных С/Ф/С пленок [6] с осью x , перпендикулярной поверхности слоев, и бесконечных в направлениях y и z , моделируются матричным методом [7–9] в 0 и π фазовом состоянии для сравнительного анализа с асимметричными С1/Ф/С2 гетероструктурами.

Затем моделируется критическая температура $C1/\Phi1/C2/\Phi2$ структур. Направление обменного поля $\Phi1$ слоя лежит в плоскости yz , $\vec{h}(x) = E_{o\phi} \vec{m}(x) = (0, E_{o\phi} \sin \alpha, E_{o\phi} \cos \alpha)$, а обменное поле $\Phi2$ слоя направлено вдоль оси z , $\vec{h}(x) = (0, 0, E_{o\phi})$, $\vec{m}(x)$ — единичный вектор, сонаправленный вектору намагниченности, $E_{o\phi}$ — энергия обменного взаимодействия. Угол α изменяется от 0 (параллельная ориентация) до π (антипараллельная ориентация). Критическая температура спинового клапана определяется в диффузионном пределе. Справедливые в этом пределе уравнения Узаледа для сверхпроводящего и ферромагнитного слоя [7]

$$\begin{cases} \left(-\frac{D_c}{2} \partial_x^2 + |\omega| \right) F_{0,\omega}(x) = \Delta(x) \\ \left(-\frac{D_c}{2} \partial_x^2 + |\omega| \right) \vec{F}_{1,\omega}(x) = \vec{0}, \end{cases} \quad (1)$$

$$\begin{cases} \left(-\frac{D_\Phi}{2} \partial_x^2 + |\omega| \right) F_{0,\omega}(x) + i \operatorname{sgn}(\omega) (\vec{h}(x), \vec{F}_{1,\omega}(x)) = 0 \\ \left(-\frac{D_\Phi}{2} \partial_x^2 + |\omega| \right) \vec{F}_{1,\omega}(x) + i \operatorname{sgn}(\omega) \vec{h}(x) F_{0,\omega}(x) = \vec{0}, \end{cases} \quad (2)$$

решаются матричным методом. Здесь $D_{c(\Phi)}$ — коэффициенты диффузии сверхпроводящего и ферромагнитного материалов. $\omega = \pi k_B T (2n+1)$ — мацубаровские частоты, $n = 0, 1, \dots, n_d$; n_d — целая часть выражения $\omega_d / 2\pi k_B T - 0.5$, где ω_d — дебаевская частота; $\Delta(x) = \pi k_B T \lambda \sum_{\omega} F_{0,\omega}(x)$ — параметр порядка в сверхпроводнике; λ — константа эффективного электрон-электронного взаимодействия; $\vec{F}_{\omega}(\vec{r}) = (F_{0,\omega} \sigma_0 + \vec{F}_{1,\omega} \vec{\sigma}) \sigma_3 = (F_{0,\omega} \sigma_0 + F_{12,\omega} \sigma_2 + F_{13,\omega} \sigma_3) \sigma_3$ — аномальная функция Грина, $F_{0,\omega}$, $F_{12,\omega}$, $F_{13,\omega}$ — синглетная и триплетные компоненты, σ_i — матрицы Паули. Уравнения (1), (2) дополнены условиями на внешних границах

$$\begin{cases} \partial_x f_{0,n}(0) = \partial_x f_{0,n}(L) = 0, \\ \partial_x \vec{f}_{1,n}(0) = \partial_x \vec{f}_{1,n}(L) = \vec{0}, \end{cases} \quad (3)$$

и на границах контактов

$$\begin{aligned} \rho^{-1}(x_i+0) \partial_x f_{0,n}(x_i+0) &= \rho^{-1}(x_i-0) \partial_x f_{0,n}(x_i-0), \\ f_{0,n}(x_i+0) &= \\ &= f_{0,n}(x_i-0) + \gamma_{\text{ГФС}} \xi_c \frac{\rho_\Phi}{\rho(x_i-0)} \partial_x f_{0,n}(x_i-0), \end{aligned} \quad (4)$$

для синглетной компоненты, и такие же условия для триплетных компонент. $\rho(x) = \rho_{c(\Phi)}$ — удельное низкотемпературное сопротивление сверхпроводящих и ферромагнитных материалов; $\xi_{c(\Phi)} = \sqrt{D_{c(\Phi)} / 2\pi k_B T_{\text{КС}}}$ — их длины когерентности,

$T_{\text{КС}}$ — температура перехода в сверхпроводящее состояние массивного сверхпроводника. Характеристическое уравнение имеет вид

$$\begin{aligned} \Psi \left(\frac{\omega_d}{2\pi k_B T} + 1 + \mu_c^{(k)}(T) \right) - \Psi \left(\frac{1}{2} + \mu_c^{(k)}(T) \right) &= \\ &= \Psi \left(\frac{\omega_d}{2\pi k_B T_{\text{КС}}} + 1 \right) - \Psi \left(\frac{1}{2} \right), \end{aligned} \quad (5)$$

где $\Psi(x)$ — дигамма функция. В данной работе используются следующие значения параметров: $T_{\text{КС}} = 7$ К, $\rho_c = 7.5$ мкОм · см, $\xi_c = 8.9$ нм, $E_{o\phi} = 150$ К, $\rho_\Phi = 60$ мкОм · см, $\xi_\Phi = 7.6$ нм.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Распределение парной волновой функции характеризует фазовое состояние и поведение критической температуры в зависимости от толщины ферромагнитного слоя симметричных $C/\Phi/C$, асимметричных $C1/\Phi/C2$ и $C1/\Phi1/C2/\Phi2$ гетероструктур (рис. 1а–3а). Физически наблюдаемой критической температурой является наибольшая из двух. 0-фазовое состояние, когда разность фаз между сверхпроводящим парным потенциалом в сверхпроводящих слоях равна нулю, и π -фазовое состояние с разным знаком у сверхпроводящих слоев изображены на рис. 1б в поперечном сечении структуры. Для асимметричных $C1/\Phi/C2$ структур толщина $C1$ слоя постоянна, толщина $C2$ слоя меньше на левой половине рис. 2а и больше на правой половине. Для различных толщин ферромагнитного слоя $d_\Phi/\xi_\Phi = 0.75, 1.0$ асимметричной структуры $C1/\Phi/C2$ построены распределения синглетной компоненты для каждой из двух критических температур. Сплошной линией показано распределение при большей T_c , пунктиром при меньшей. Нормирующий знаменатель $\sum f_0$ синглетных компонент асимметричной структуры $C1/\Phi/C2$ большей T_c принадлежит более толстому сверхпроводящему слою на рис. 2б.

В $C1/\Phi/C2$ структуре π -состояние (с разностью фаз π между сверхпроводящими слоями) может иметь большую критическую температуру, чем в 0-состоянии (с нулевой разностью фаз) (рис. 1 и 2). Вероятно, что $C1/\Phi1/C2/\Phi2$ структура также содержит спин-вентильные режимы в π -состоянии с большей критической температурой, чем в $C/\Phi1/\Phi2$ структуре. Для $C1/\Phi1/C2/\Phi2$ структуры толщина $C1$ слоя такая же, как и для $C1/\Phi/C2$ на рис. 1 и 2, толщины $\Phi1$ и $\Phi2$ слоев одинаковые (рис. 3). Распределение синглетных компонент обсуждается как основная причина поведения критической температуры $C1/\Phi1/C2/\Phi2$ структуры в зависимости от угла α между магнитными моментами ферромагнитных слоев. Толщина ферромагнитного слоя между сверхпроводниками,

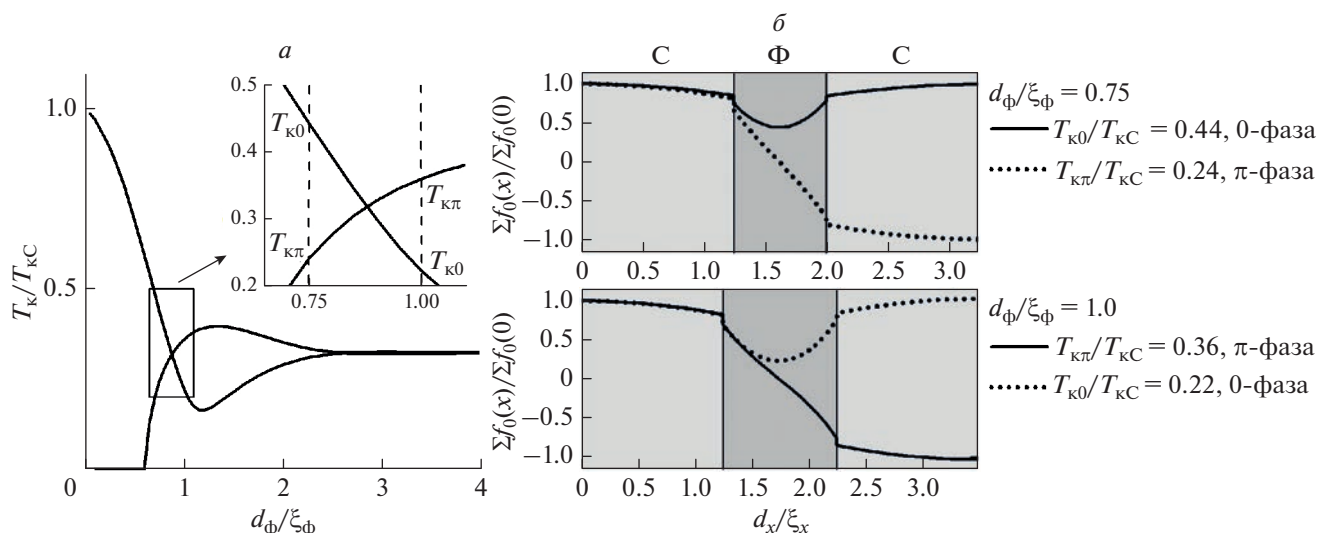


Рис. 1. T_K как функция толщины d_ϕ симметричной С/Φ/С структуры, $d_c/\xi_c = 1.24$, $\gamma_{\text{ГФс}} = 0.07$ (а). Распределения спиновых синглетных $\Sigma f_0(x)/\Sigma f_0(0)$ компонент сверхпроводящего спаривания в поперечном сечении структуры для рис. 1а (б).

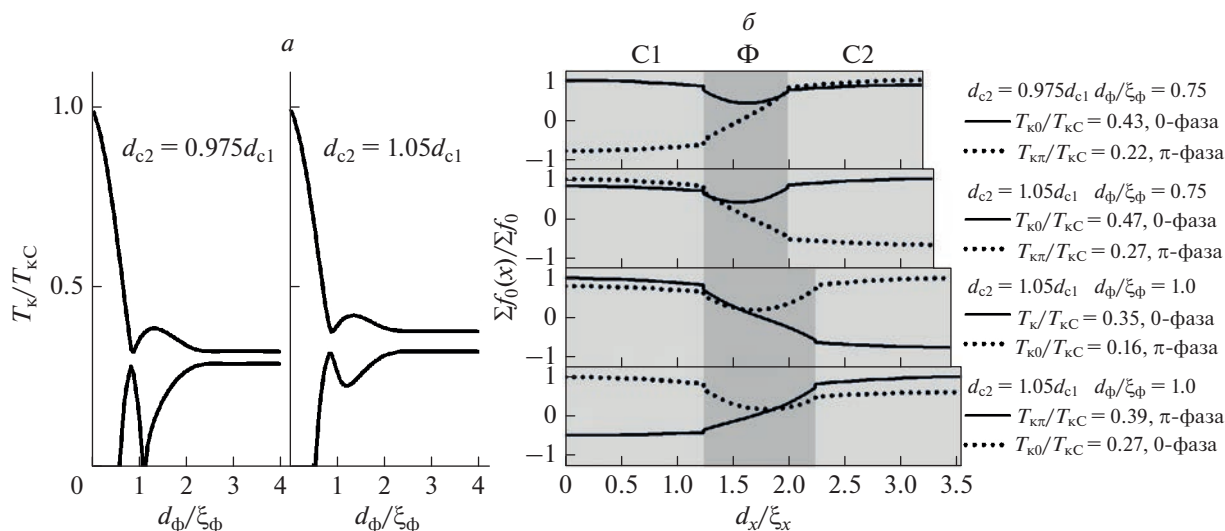


Рис. 2. T_K как функция толщины d_ϕ асимметричной С1/Φ/С2 структуры, $d_{c1}/\xi_{c1} = 1.24$, $\gamma_{\text{ГФс}} = 0.07$ (а). Распределение спиновых синглетных $\Sigma f_0(x)/\Sigma f_0(0)$ компонент сверхпроводящего спаривания в поперечном сечении структуры для рис. 2а (б).

при которой происходит смена фазового состояния структуры, при изменении угла между намагниченностями ферромагнитных слоев смещается в сторону больших толщин. Возникает область толщин ферромагнитного слоя $d_\phi/\xi_\phi = 0.9 - 0.95$ (рис. 3а), при которой происходит смена фазового состояния с π - на 0-фазовое состояние. Вопреки предположению, полученные режимы обладают меньшей критической температурой, чем в случае, когда смена фазового состояния при изменении угла

между намагниченностями ферромагнитных слоев смещалась бы в сторону меньших толщин и происходила смена фазового состояния с 0- на π -фазовое состояние. Добавление С2 слоя в С/Φ1/Φ2 структуру изменяет прямой, триплетный и инверсный режимы на прямой режим с большим значением критической температуры, чем в С/Φ1/Φ2 структуре (вставки на рис. 3).

Получен триплетный режим, реализующийся переходом из π - в 0-фазовое состояние (рис. 4а). Для па-

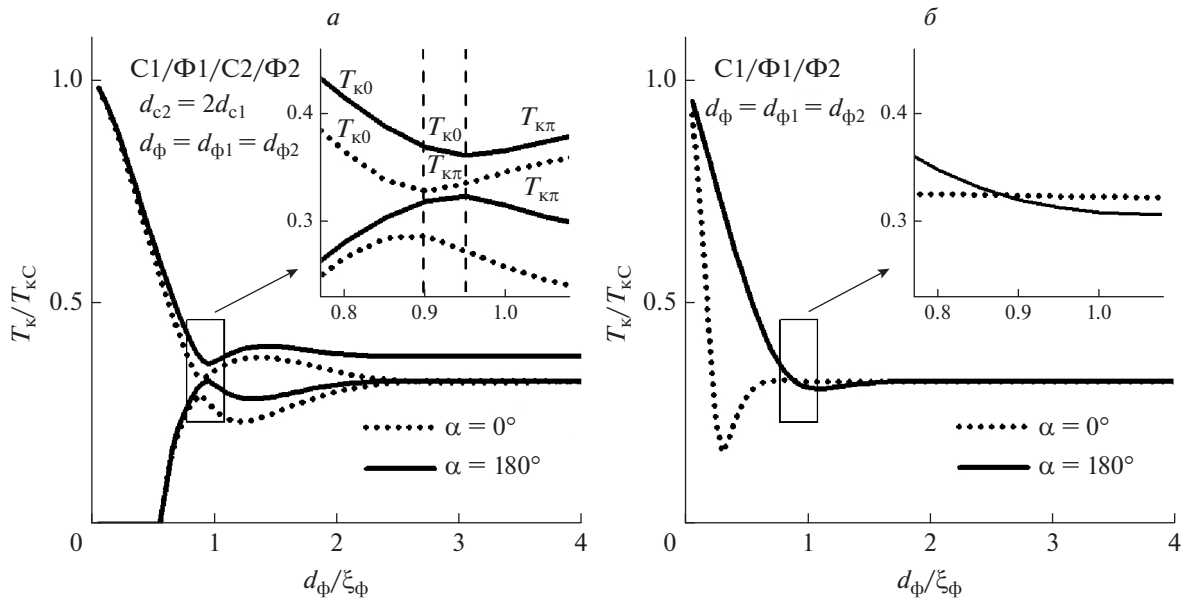


Рис. 3. T_K как функция толщины d_F для параллельной и антипараллельной конфигурации магнитных моментов ферромагнитных слоев для: C1/ Φ 1/C2/ Φ 2 (a) и C/ Φ 1/ Φ 2 (б) структуры. Остальные параметры задаются как $d_{c1}/\xi_{c1} = 1.24$, $\gamma_{\text{ГФС}} = 0.07$.

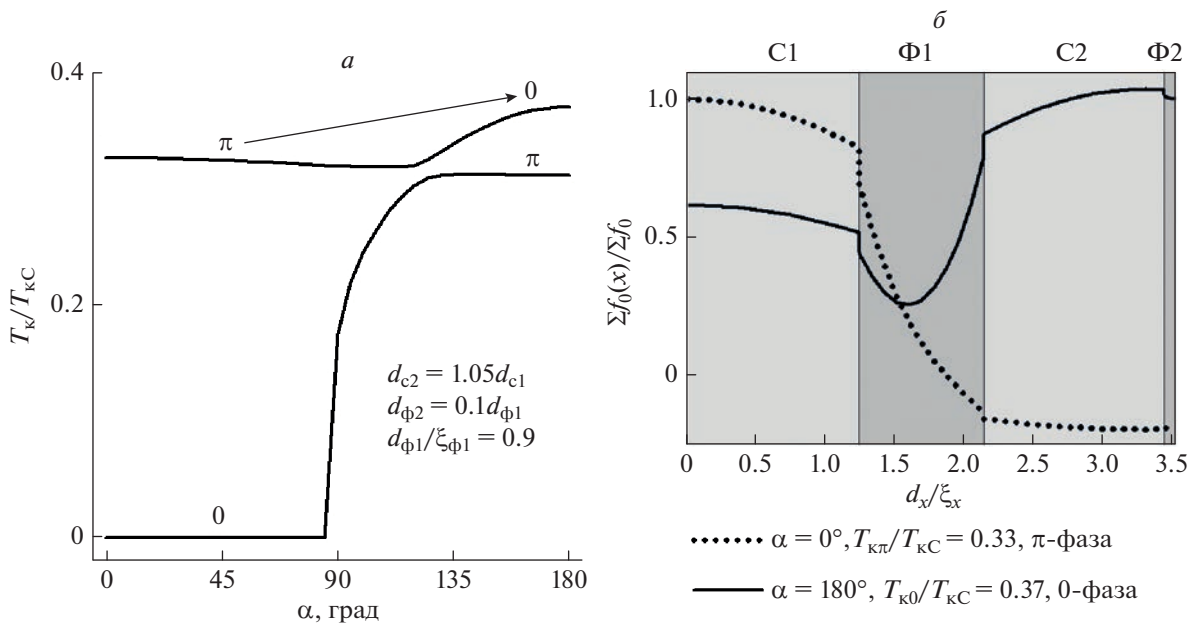


Рис. 4. Критическая температура T_K C1/ Φ 1/C2/ Φ 2 структуры в зависимости от угла α , $d_{c1}/\xi_{c1} = 1.24$, $\gamma_{\text{ГФС}} = 0.07$ (a). Распределение спиновых синглетных $\Sigma f_0(x)/\Sigma f_0$ компонент сверхпроводящего спаривания в поперечном сечении C1/ Φ 1/C2/ Φ 2 структуры рис. 4a (б).

параллельной и антипараллельной ориентаций намагниченностей ферромагнитных слоев C1/ Φ 1/C2/ Φ 2 структуры построены распределения синглетной составляющей в поперечном сечении для большей из двух критических температур (рис. 4б).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, получена критическая температура несимметричной C1/ Φ 1/C2 трехслойной гетероструктуры в зависимости от толщин слоев и распределение по слоям в поперечном сечении

структуры спин-синглетной компоненты конденсатной функции. Кроме того, был получен фазовый переход из π - в 0-фазовое состояние при изменении угла α между намагниченностями ферромагнитных слоев в C1/ Φ 1/C2/ Φ 2 гетероструктуре.

Работа была поддержана Программой КФУ “Приоритет-2030”. В.Н.К. благодарит за поддержку проект ГПНИ “Конвергенция-2025” (2021–2025), подпрограмму “Междисциплинарные исследования и новые зарождающиеся технологии”, проект “Спиновое упорядочение в гетероструктурах типа Сверхпроводник–Графен”.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Bergeret F.S., Volkov A.F., Efetov K.B.* // Rev. Mod. Phys. 2005. V. 77. No. 4. P. 1321.
2. *Fominov Ya.V., Golubov A.A., Karminskaya T.Y. et al.* // Письма в ЖЭТФ. 2010. Т. 91. № 6. С. 329; *Fominov Y.V., Golubov A.A., Karminskaya T.Y. et al.* // JETP Lett. 2010. V. 91. No. 6. P. 308.
3. *Fominov Ya.V., Golubov A.A., Kupriyanov M.Y.* // JETP Lett. 2003. V. 77. No. 9. P. 510.
4. *Гайфуллин Р.Р., Кушнир В.Н., Демин Р.Г. и др.* // ФТТ. 2019. Т. 61. № 9. С. 1585; *Gaifullin R.R., Kushnir V.N., Deminov R.G. et al.* // Phys. Solid State. 2019. V. 61. No. 9. P. 1535.
5. *Fominov Y.V., Chitchev N.M., Golubov A.A.* // Phys. Rev. B. 2002. V. 66. No. 1. Art. No. 014507.
6. *Karabassov T., Stolyarov V.S., Golubov A.A. et al.* // Phys. Rev. B. 2019. V. 100. No. 10. Art. No. 104502.
7. *Кушнир В.Н.* // Докл. БГУИР. 2016. Т. 97. № 3. С. 18.
8. *Кушнир В.Н.* Сверхпроводимость слоистых структур. Минск: БНТУ, 2010. 234 с.
9. *Kushnir V.N., Prischepa S.L., Cirillo C. et al.* // Phys. Rev. B. 2011. V. 84. No. 21. Art. No. 214512.

Modeling of the superconducting triplet spin valve with several superconductor layers

**R. R. Gaifullin^{a,*}, R. G. Deminov^a, V. N. Kushnir^{b,c}, M. Yu. Kupriyanov^d,
A. A. Golubov^e, L. R. Tagirov^{a,f}**

^a Institute of Physics, Kazan Federal University, Kazan, 420008 Russia

^b Belarus State University of Informatics and Radioelectronics, Minsk, 220013 Belarus

^c Theoretical Physics Department, Belarusian State University, Minsk, 220030 Belarus

^d Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Moscow State University, Moscow, 119992 Russia

^e Faculty of Science and Technology and MESA+ Institute of Nanotechnology, University of Twente, Enschede, 7500 AE The Netherlands

^f Zavoisky Physical-Technical Institute, FRC Kazan Scientific Center of the Russian Academy of Sciences, Kazan, 420029 Russia

*e-mail: gaifullin.rashid@gmail.com

Using the matrix method for solving the linearized Usadel equations, the critical temperature and the distribution of singlet pairing components of the superconductor/ferromagnet/superconductor/ferromagnet structure with nonideal boundaries are obtained. A transition from the π - to the 0-phase state between layers of superconductors was obtained with a change in the angle between the magnetizations of ferromagnetic layers in such a structure.

УДК 537.86:534-8

СВЧ ПЕРЕКЛЮЧЕНИЯ В МАГНИТНОЙ И УПРУГОЙ ПОДСИСТЕМАХ ТРЕХСЛОЙНОЙ МАГНИТНОЙ СТРУКТУРЫ

© 2023 г. Л. Н. Котов¹ *, М. Ю. Дианов¹, В. С. Власов¹, В. В. Миронов¹

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования “Сыктывкарский государственный университет”, Сыктывкар, Россия

*E-mail: kotovln@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Были выявлены три режима магнитных и упругих колебаний слоев при возбуждении трехслойной планарной магнитной структуры СВЧ магнитным полем: СВЧ переключения, низкочастотные колебания, СВЧ синусоидальные колебания. Каждый режим колебаний слоев наблюдается в определенном интервале амплитуд переменного поля в зависимости от постоянного магнитного поля и магнитоупругой константы слоя.

DOI: 10.31857/S0367676522700843, EDN: NLBLAK

ВВЕДЕНИЕ

В последнее десятилетие быстро развивается область стрейнтроники, связанной с реализацией устройств записи/считывания информации на основе электро- и магнито-упругих эффектов в многослойных структурах [1, 2]. Причем на современном этапе развития магнитоакустики возможно использование сверхбыстрых эффектов для управления магнитными наноструктурами. Такая область носит название сверхбыстрой магнитоакустики, в которой сверхкороткие (пикосекундные) упругие импульсы эффективно управляют магнитным состоянием различных наноструктур [3]. Новое поколение устройств стрейнтроники не уступает, а по ряду позиций, включая скорость работы и энергоэффективность, опережает современные устройства, работающие на стандартной полупроводниковой технологии [1–3]. Для дальнейшего улучшения характеристик устройств стрейнтроники необходимо изучить нелинейные магнитоупругие эффекты в многослойных магнитных структурах. Выявление новых нелинейных эффектов магнитоупругой СВЧ динамики в многослойных структурах внесет вклад в развитие современной магнитоакустики, теорию нелинейных волн и нелинейных динамических систем [3–11]. Новые эффекты могут быть выявлены, например, с помощью моделирования СВЧ динамики [4, 9], включая эффекты переключения магнитных и упругих состояний в планарной трехслойной магнитной структуре при возбуждении ее СВЧ магнитным полем, исследованию которых и посвящена

данная работа. Моделирование СВЧ переключений магнитных и упругих состояний в трехслойной структуре позволяет определить амплитуды и частоты переменного поля в зависимости от постоянного магнитного поля, значений материальных параметров слоев, при которых наблюдается эффект СВЧ переключения. Кроме этого, результаты проведенных исследований позволят выявить новые материалы, которые можно будет использовать, например, в качестве СВЧ датчиков электромагнитного поля, а также датчиков упругих колебаний и волн.

ОСНОВНЫЕ УРАВНЕНИЯ

Рассмотрим планарную трехслойную магнитную структуру [4]. Обозначим верхний слой структуры буквой p , средний слой буквой d , а третий слой буквой r . Конфигурация постоянного и переменного магнитных полей выбиралась исходя из геометрии, предотвращающей процессы параметрического распада в области ферромагнитного резонанса (ФМР) [12]. Для такой геометрии необходимо, чтобы ось Oz декартовой системы координат совпадала с направлением постоянного поля $\vec{H}_0$ и с направлением нормали к плоскости трехслойной структуры. Внешнее переменное магнитное поле $\vec{h}$ имело круговую поляризацию и лежало в плоскости Oxy , т.е. плоскость вращения вектора переменного магнитного поля совпадала с плоскостью слоев структуры. При моделировании рассматривалось взаимодействие только сдвиговых

упругих колебаний с магнитными колебаниями. В уравнениях плотность энергии трехслойной структуры представляла собой сумму зеemanовской энергии, энергии диполь-дипольного взаимодействия, магнитоупругой и упругой энергии [5–8]:

$$\begin{aligned}
 U_j = & -M_{0j}h_xm_{jx} - M_{0j}h_y m_{jy} - M_{0j}H_0m_{jz} + \\
 & + 2\pi M_{0j}^2m_{jz}^2 + 2B_{j2}(m_{jz}m_{jy}u_{zy} + m_{jx}m_{jz}u_{xz}) + \\
 & + \frac{1}{2}C_{11}(u_{xx}^2 + u_{yy}^2 + u_{zz}^2) + \\
 & + C_{12}(u_{xx}u_{yy} + u_{zz}u_{yy} + u_{xx}u_{zz}) + \\
 & + 2C_{44}(u_{xy}^2 + u_{yz}^2 + u_{zx}^2),
 \end{aligned} \quad (1)$$

где U_j — плотность энергии для слоя j ($j = p, d, r$); M_{0j} — намагниченность насыщения j -слоя; h_x, h_y — компоненты переменного магнитного поля, m_{ji} — компоненты единичного вектора намагниченности для слоя j , H_0 — напряженность постоянного магнитного поля, B_{j2} — магнитоупругая константа слоя j , C_{11} , C_{12} , C_{44} — компоненты тензора упругих модулей, u_{ik} — компоненты тензора деформации для слоя j . Для упрощения задачи нахождения численных решений для трехслойной магнитной структуры в данной работе не учитывалась поверхностная анизотропия при записи полной плотности энергии (1). С этой же целью нами не рассматривалась энергия магнитной кристаллографической анизотропии слоев и продольные колебания упругих смещений, то есть считалось, что константы C_{11} , C_{12} равны нулю. Кроме того, в выражении (1), компонента деформации u_{xy} принималась равной нулю, поскольку нами учитывались только компоненты u_{yz} , u_{xz} , которые связаны со сдвиговыми упругими стоячими волнами, распространяющимися вдоль оси Oz . Считалось, что в плоскости слоя значения упругого смещения и магнитных компонент не изменяются, а меняются только вдоль оси Oz , перпендикулярной плоскости слоев. Для получения полной плотности энергии трехслойной структуры нужно было провести суммирование плотностей энергий от отдельных слоев, определяемых выражением (1). Магнитоупругая динамика трехслойной структуры описывалась системой уравнений Ландау–Лифшица–Гильберта и уравнением движения упругой среды, записанных для каждого слоя в отдельности [4, 9]. В систему уравнений Ландау–Лифшица–Гильберта входит суммарное эффективное поле, которое получается путем нахождения частных производных плотности энергии по компонентам вектора намагниченности. Таким образом, отдельные эф-

фективные поля можно записать следующим образом [5–8]: поле магнитоупругости

$$\begin{aligned}
 \vec{H}_{magel} = & -\frac{B_{j2}}{M_{j0}}m_{jz}\frac{\partial u_x}{\partial z}\vec{e}_x - \frac{B_{j2}}{M_{j0}}m_{jz}\frac{\partial u_y}{\partial z}\vec{e}_y - \\
 & - \frac{B_{j2}}{M_{j0}}\left(m_{jx}\frac{\partial u_x}{\partial z} + m_{jy}\frac{\partial u_y}{\partial z}\right)\vec{e}_z,
 \end{aligned} \quad (2)$$

поле размагничивания

$$\vec{H}_{demag} = -4\pi M_0 m_z \vec{e}_z, \quad (3)$$

внешнее магнитное поле

$$\vec{H}_{ex} = h_x \vec{e}_x + h_y \vec{e}_y + H_0 \vec{e}_z. \quad (4)$$

Связь слоев в системе уравнений обеспечивалась через граничные условия для упругих и магнитных компонент. Приведем пример для p -слоя

$$\begin{aligned}
 C_{44}\frac{\partial u_{px}}{\partial z} + B_{p2}m_{px}m_{pz}\Big|_{z=-\left(\frac{d}{2}+p\right)} &= 0, \\
 C_{44}\frac{\partial u_{px}}{\partial z} + B_{p2}m_{px}m_{pz}\Big|_{z=-\frac{d}{2}} &= C_{44}\frac{\partial u_{dx}}{\partial z} + B_{d2}m_{dx}m_{dz}\Big|_{z=-\frac{d}{2}} \\
 u_{px}\Big|_{z=-\frac{d}{2}} &= u_{dx}\Big|_{z=-\frac{d}{2}}.
 \end{aligned} \quad (5)$$

Для записи граничных условий для другого слоя r в уравнении (5) надо поменять индекс p на индекс r и записать другие координаты границ для r слоя [4]. Граничные условия для d слоя в данной работе не принимались во внимание, так как этот слой обуславливал только магнитную и упругую связь между внешними слоями p и r структуры. Общее решение для упругих смещений искалось в виде суммы однородной и неоднородной частей компонент упругих смещений [4, 5]

$$u_i(z, t) = U_i(z, t) + v_i(z, t), \quad (6)$$

где $v_i(z, t)$ — однородная часть решения, частная производная которой по координате z равна 0 на внешних поверхностях структуры, $i = x, y$; U_i — функция, учитывающая неоднородные члены решения, которая является кусочно-линейной функцией от координаты z . Однородная и неоднородная части решения уравнений разлагается по собственным функциям. Для получения расчетной системы дифференциальных уравнений находились собственные функции магнитоупругой задачи. После подстановки полученных выражений в уравнения для движения смещений упругой среды [4], получается нелинейная система обыкновенных дифференциальных уравнений, состоящая из уравнений Ландау–Лифшица–Гильберта и уравнений для мод упругих сме-

щений. Уравнение для упругих смещений для p слоя можно записать в следующем виде [5–8]

$$u_x(z, t) = -\left(\frac{B_{p2}}{C_{44}} m_{px} m_{pz}\right) z + \frac{d}{2} \left(\frac{B_{d2}}{C_{44}} m_{dx} m_{dz} - \frac{B_{p2}}{C_{44}} m_{px} m_{pz}\right) + v_{0px}(t) + v_{1px}(t) \cos\left(\frac{\pi}{p} z + \frac{\pi}{p} \frac{d}{2}\right), \quad (7)$$

и для r слоя

$$u_x(z, t) = -\left(\frac{B_{r2}}{C_{44}} m_{rx} m_{rz}\right) z - \frac{d}{2} \left(\frac{B_{d2}}{C_{44}} m_{dx} m_{dz} - \frac{B_{r2}}{C_{44}} m_{rx} m_{rz}\right) + v_{0rx}(t) + v_{1rx}(t) \cos\left(-\frac{\pi}{r} z + \frac{\pi}{r} \frac{d}{2}\right), \quad (8)$$

где $v_{lx}(t)$ – l -моды упругих смещений ($l = 0, 1$) для слоев j ($j = p, r$). Уравнения (7), (8) представляют собой полное решение для упругих смещений в слоях структуры, полученное как результат сложения однородной и неоднородной частей (6). Как уже упоминалось, неоднородная часть решения представляет собой кусочно-линейную функцию, и эта часть решения соответствует первым двум слагаемым в уравнениях (7), (8). Однородная часть решения представлена третьим и четвертым слагаемыми в уравнениях (7), (8). При этом учитывается только нулевой и первый член разложения в ряд Фурье по собственным функциям магнитоупругой задачи. Для численного интегрирования полученной нелинейной системы обыкновенных дифференциальных уравнений применялся метод Рунге–Кутты–Фельберга 4–5 порядков [14]. При расчетах напряженность постоянного магнитного поля H_0 изменялась от 200 до 500 Э, т.е. около поля размагничивания слоев, равных $4\pi M_s = 280$ Гс. Амплитуда переменного магнитного поля варьировалась от 10^{-4} до 30 Э, а частота поля менялась от 0.1 до 5 ГГц.

ПАРАМЕТРЫ СЛОЕВ

Толщина первых двух магнитных слоев выбиралась равной $p = d = 0.1$ мкм, а толщина третьего слоя $r = 0.48$ мкм. Размеры в плоскости слоев выбирались намного большими толщины слоев, чтобы исключить влияние размагничивающего поля вдоль слоев. Для заданных толщин слоев выполнялось условие акустического резонанса на частоте 2.5 ГГц для трехслойной структуры, когда суммарная толщина трех слоев соответствовала половине длины упругой поперечной волны. Известно из [4, 9], что в условиях акустического резонанса возникает максимальное преобразова-

ние СВЧ магнитной энергии в упругую энергию трехслойной структуры. Значение плотности слоев выбиралось равным $\rho = 5.17$ г/см³; константы упругости слоев $C_{44} = 7.64 \cdot 10^{11}$ эрг · см⁻³; намагниченности насыщения $4\pi M_{0p} = 4\pi M_{0d} = 4\pi M_{0r} = 280$ Гс; параметр магнитной диссипации $\alpha = 0.3$, константа упругих потерь $\beta = 10^9$ с⁻¹. Константы магнитоупругой связи слоев p и d брались постоянными $B_{p2} = B_{d2} = 6.96 \cdot 10^6$ эрг · см⁻³, а для третьего r слоя она изменялась от 0 до $1.2B_{p2}$. Упругие и магнитоупругие константы слоев структуры выбирались близкими к константам известных магнитных кристаллов, такими как железо-иттриевый гранат [10]. Однако в данной работе, значение намагниченности насыщения при комнатной температуре выбиралась в 5 раз меньшей, чем у железо-иттриевого граната, чтобы уменьшить возникающее поле размагничивания и рассматривать магнитоупругую динамику при изменении постоянного магнитного поля в меньшем интервале, включающем нормальное поле размагничивания слоя. Полученные результаты можно будет пересчитать достаточно быстро для других значений намагниченности.

ОПИСАНИЕ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

В результате численного решения системы уравнений Ландау–Лифшица–Гильберта и уравнений для упругих смещений слоев [5–8], были получены графики временных зависимостей компонент единичного вектора намагниченности и упругих смещений p и r слоев трехслойной магнитной структуры, а также их прецессионные портреты (рис. 1–4). На рис. 1–4 показаны графики временных зависимостей амплитуд магнитных и упругих колебаний при значениях магнитоупругой константы для p слоя $B_{p2} = 6.96 \cdot 10^6$ эрг/см³ и для r слоя $B_{r2} = 8.35 \cdot 10^6$ эрг/см³ на частоте переменного поля $f = 2.5 \cdot 10^9$ Гц при трех значениях постоянного магнитного поля $H_0 = 250, 260, 265$ Э, незначительно меньших поля размагничивания $H_p = 280$ Э. При малых амплитудах переменного поля $h = 0.1$ Э наблюдается быстрое (около 20 нс) переключение вектора намагниченности из одного магнитного состояния $m_{rx} = 0$ в другое состояние $m_{px}, m_{rx} \approx -0.5$ (рис. 1а, 1б). Движение вектора намагниченности в плоскости xy для слоев p и r показано на магнитных прецессионных портретах (рис. 1д, 1е). Переключения магнитных состояний слоев возникает за счет возникновения статических деформаций p и r слоев из-за начального отклонения вектора намагниченности. Упругая деформация слоев $u_{px}, u_{rx} = 0$ переходит в состояние с $u_{px} = -2 \cdot 10^{-10}$ см, $u_{rx} = -6 \cdot 10^{-10}$ см (рис. 1в, 1з).

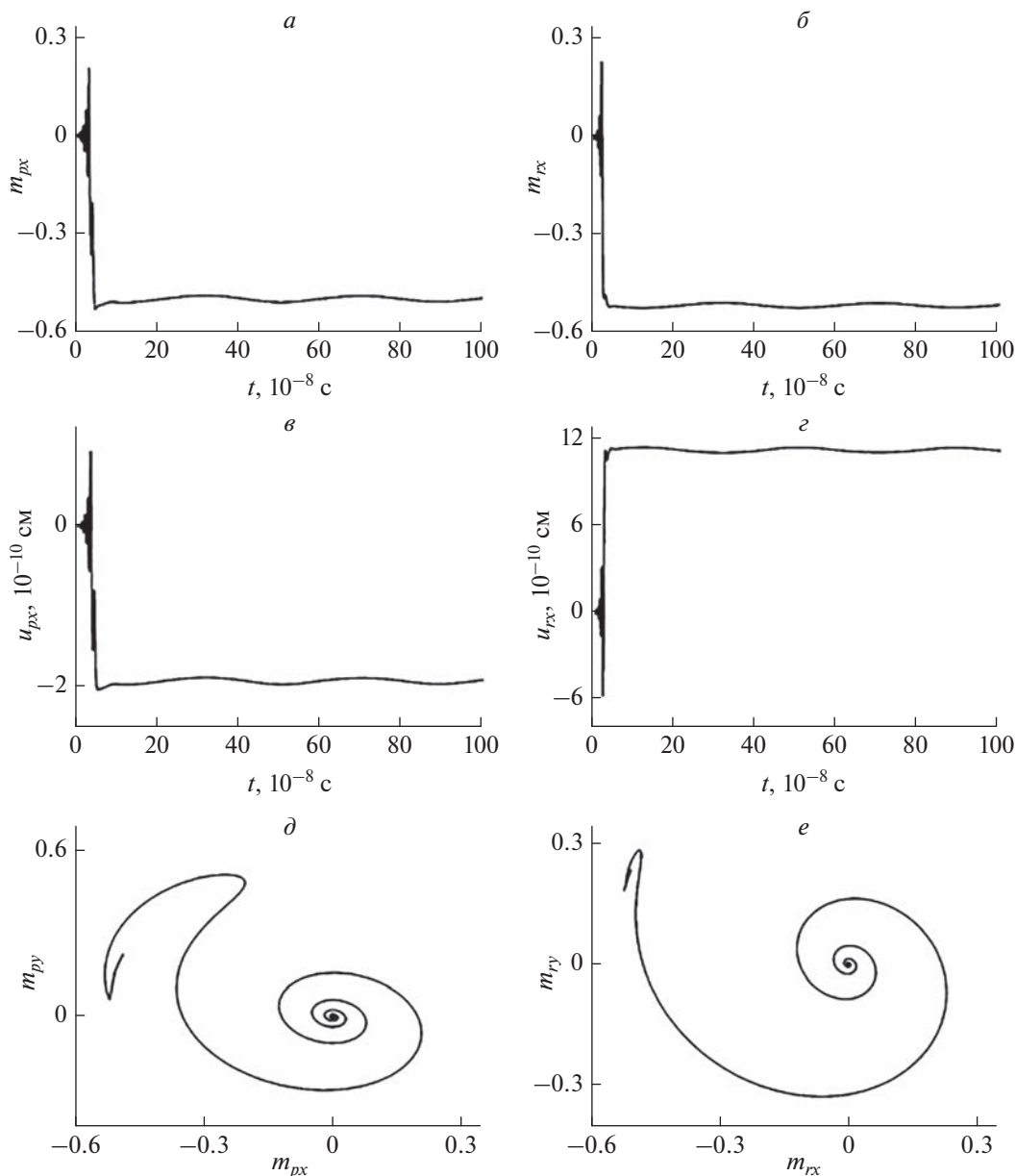


Рис. 1. Временные зависимости амплитуд компонент магнитных (*a*, *б*), упругих (*в*, *г*) колебаний для *p* и *r* слоя и их магнитные прецессионные портреты (*д*, *е*). $H_0 = 250$ Э, $f = 2.5 \cdot 10^9$ Гц, $h = 0.1$ Э.

При больших амплитудах переменного поля ($h > 1$ Э), но при таком же значении постоянного магнитного поля $H_0 = 250$ Э, возникают периодические низкочастотные колебания и переключения магнитных и упругих состояний с периодом около 0.4 мкс (рис. 2). Переключения возникают между двумя магнитными состояниями слоев $m_{px}, m_{rx} = \pm 0.5$ и упругими состояниями слоев, со смещениями $u_{px} = \pm 2 \cdot 10^{-10}$ см, $u_{rx} \approx \pm \cdot 10^{-9}$ см. При несколько большем постоянном магнитном поле

$H_0 = 260$ Э наблюдаются переключения упругих и магнитных состояний только для *p* слоя (рис. 3*a*, 3*в*, 3*г*). В то же время для слоя *r* с большей константой магнитоупругой связи B_{r2} , чем у *p* слоя, наблюдаются синусоидальные колебания вектора намагниченности и упругих смещений на частоте переменного поля $f \approx 2.5$ ГГц (рис. 3*a*, 3*г*, 3*е*). При еще большем постоянном магнитном поле $H_0 = 265$ Э, можно наблюдать уже для обоих *p* и *r* слоев синусоидальные колебания вектора намагниченно-

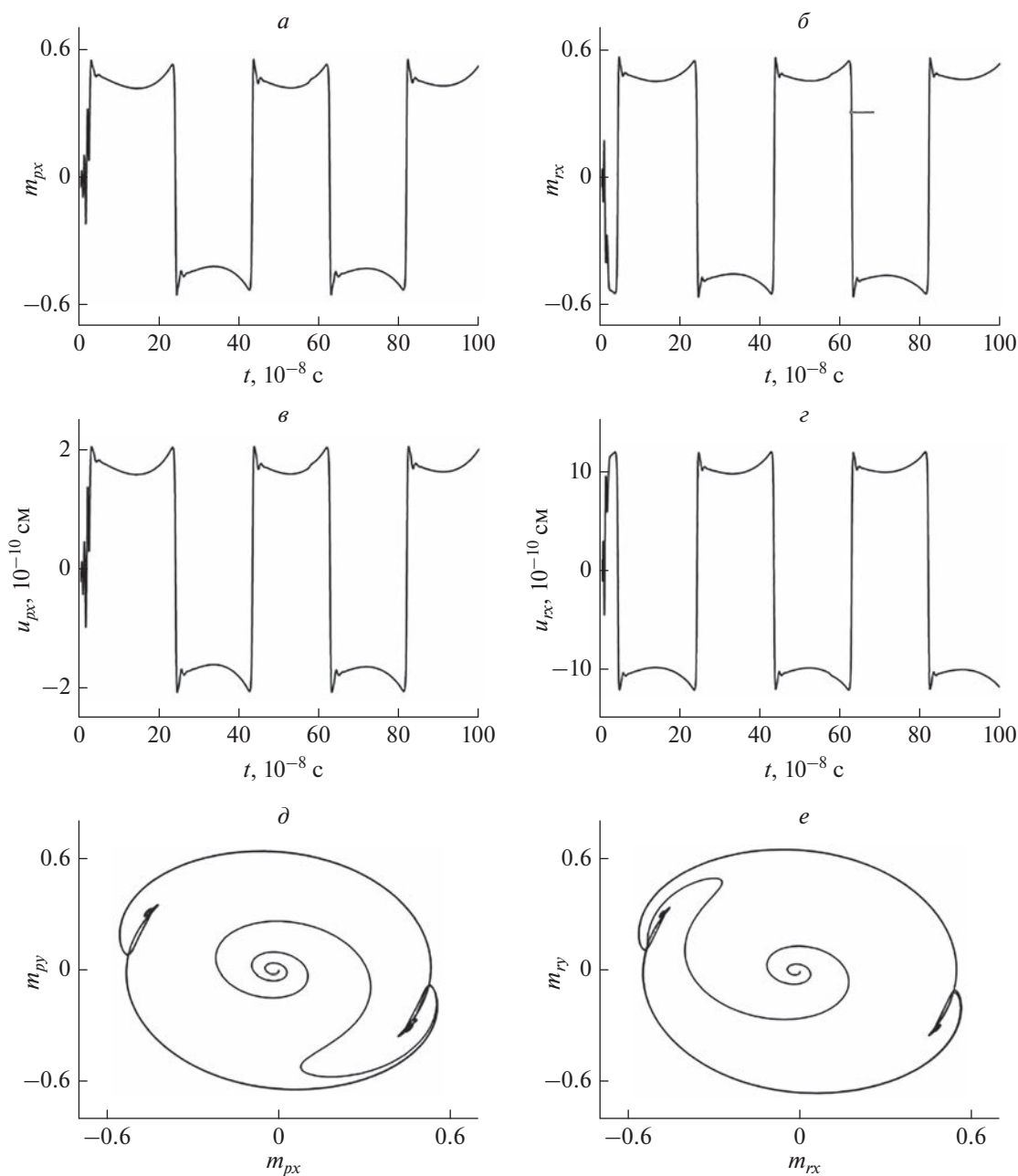


Рис. 2. Временные зависимости амплитуд компонент магнитных (*а, б*), упругих (*в, г*) колебаний для *p* и *r* слоя и их магнитные прецессионные портреты (*д, е*). $H_0 = 250$ Э, $f = 2.5 \cdot 10^9$ Гц, $h = 1$ Э.

сти и упругих смещений на частоте переменного магнитного поля $f \approx 2.5$ ГГц (рис. 4*а–д*).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнено моделирование СВЧ переключений магнитных и упругих колебаний двух слоев планарной трехслойной магнитной структуры. Как показали результаты расчетов, статические

упругие деформации и постоянные значения компонент вектора намагниченности *p* и *r* слоев трехслойной структуры возникают лишь при малых амплитудах переменного поля $h = 0.001–0.99$ Э в широком интервале частот $f = 0.8–2.5$ ГГц в постоянных магнитных полях, не превышающих поле размагничивания. При больших амплитудах переменного поля $h = 1–30$ Э наблюдаются прямоугольные низкочастотные магнитные и упругие колебания с периодом 0.4 мкс. Переменное

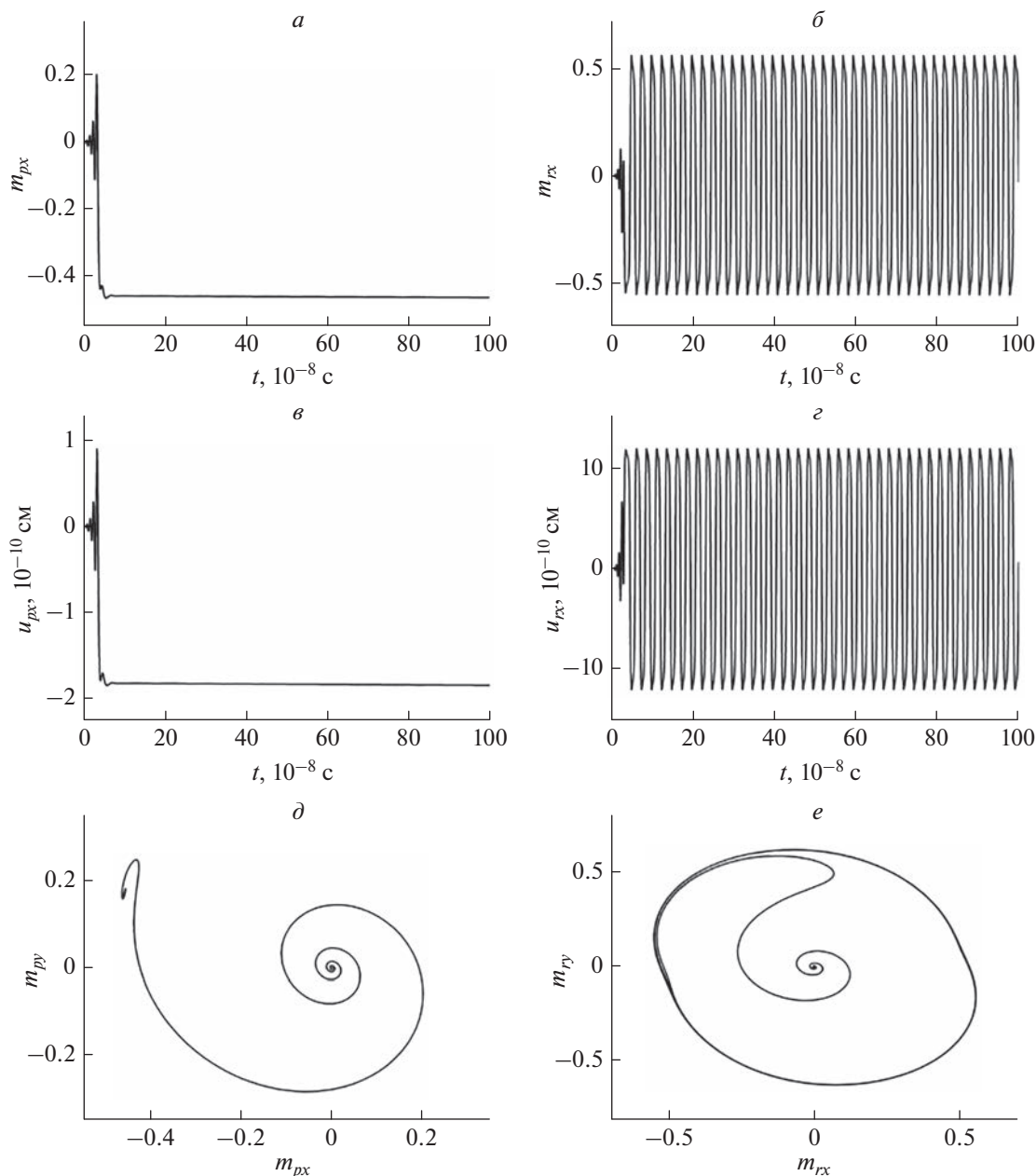


Рис. 3. Временные зависимости амплитуд компонент магнитных (*a*, *б*), упругих (*в*, *г*) колебаний для *p* и *r* слоя и их магнитные прецессионные портреты (*д*, *е*). $H_0 = 260$ Э, $f = 2.5 \cdot 10^9$ Гц, $h = 0.1$ Э.

магнитное поле в случае возникновения статических деформаций и измененных положений вектора намагниченности играет роль отклоняющего момента сил из начального положения вектора намагниченности слоев. При постоянном магнитном поле, близком к полю размагничивания, переменное магнитное поле вращает вектор намагниченности слоя бесконечно долго, что сопровождается бесконечными синусоидальными колебаниями. Расчеты показывают, что чем боль-

ше константа магнитоупругой связи слоя B_2 , тем при большей разнице между постоянным магнитным полем и полем размагничивания слоя, начинают возникать синусоидальные магнитные и упругие колебания на частоте переменного поля. В этом случае конечные состояния магнитной и упругой подсистем слоев определяются лишь временем выключения переменного магнитного поля. Наблюдающееся СВЧ переключения и возникновение низкочастотных и высокочастотных

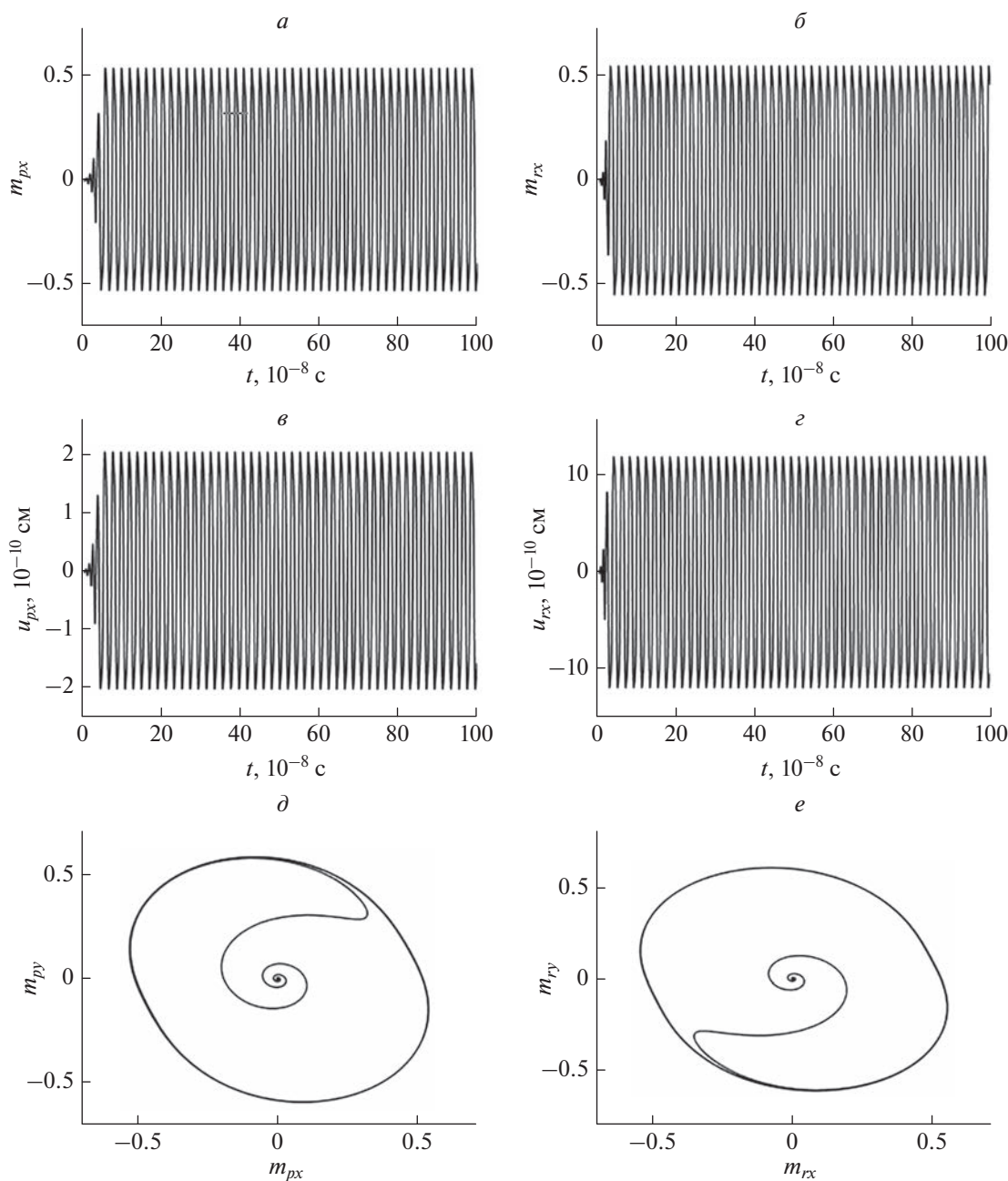


Рис. 4. Амплитуды компонент магнитных (а, б), упругих (в, г) колебаний для p и r слоя и их магнитные прецессионные портреты (д, е). $H_0 = 265$ Э, $f = 2.5 \cdot 10^9$ Гц, $h = 0.1$ Э.

магнитных и упругих колебаний слоев на частоте поля, можно будет использовать для СВЧ записи и считывания информации в трехслойной магнитной структуре, а также для управления тремя режимами магнитных и упругих колебаний трехслойной структуры при помощи постоянного и переменного магнитного полей. С учетом наличия магнитоупругой связи в слоях структуры, для наблюдения явления СВЧ переключения, можно вместо переменного магнитного поля использо-

вать акустические импульсы, проходящие через слой структуры.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-72-20048).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бухараев А.А., Звездин А.К., Пятаков А.П. и др. // УФН. 2018. Т. 188. № 12. С. 1288; Bukharaev A.A.,

- Zvezdin A.K., Pyatakov A.P. et al. // Phys. Usp. 2018. V. 61. No. 12. P. 1175.*
2. *Bandyopadhyay S., Atulasimha J., Barman A. // Appl. Phys. Rev. 2021. V. 8. No. 4. Art. No. 041323.*
3. *Власов В.С., Голов А.В., Котов Л.Н. и др. // Акуст. журн. 2022. Т. 68. № 1. С. 22; Vlasov V.S., Golov A.V., Kotov L.N. et al. // Acoust. Phys. 2022. V. 68. No. 1. P. 18.*
4. *Котов Л.Н., Дианов М.Ю., Власов В.С. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2022. Т. 86. № 9. С. 1363; Kotov L.N., Dianov M.Yu., Vlasov V.S. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2022. V. 86. No. 9. P. 1128.*
5. *Власов В.С., Шавров В.Г., Щеглов В.И. // Радиотехн. и электрон. 2014. Т. 59. № 5. С. 482; Vlasov V.S., Shavrov V.G., Shcheglov V.I. // J. Commun. Technol. Electron. 2014. V. 59. No. 5. P. 441.*
6. *Власов В.С., Котов Л.Н., Шавров В.Г. и др. // Радиотехн. и электрон. 2009. Т. 54. № 7. С. 874; Vlasov V.S., Kotov L.N., Shavrov V.G. et al. // J. Commun. Technol. Electron. 2009. V. 54. No. 7. P. 832.*
7. *Власов В.С., Котов Л.Н., Шавров В.Г. и др. // Радиотехн. и электрон. 2012. Т. 57. № 5. С. 516; Vlasov V.S., Kotov L.N., Shavrov V.G. et al. // J. Commun. Technol. Electron. 2012. V. 57. No. 5. P. 453.*
8. *Власов В.С., Кирюшев М.С., Котов Л.Н. и др. // Радиотехн. и электрон. 2013. Т. 58. № 9. С. 857; Vlasov V.S., Kirushev M.S., Kotov L.N. et al. // J. Commun. Technol. Electron. 2013. V. 58. P. 847.*
9. *Дианов М.Ю., Котов Л.Н., Власов В.С. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 12. С. 1707.*
10. *Власов В.С., Котов Л.Н., Липина Е.С. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2013. Т. 77. № 10. С. 1459; Vlasov V.S., Kotov L.N., Lipina E.S. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2013. V. 77. No. 10. P. 1255.*
11. *Плешев Д.А., Асадуллин Ф.Ф., Оганезова Н.А. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 7. С. 987; Pleshchev D.A., Asadullin F.F., Oganezova N.A. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. No. 7. P. 901.*
12. *Feron A.M., Camley R.E. // Phys. Rev. B. 2017. V. 95. Art. No. 104421.*
13. *Гуревич А.Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. М.: Наука, 1973. 592 с.*
14. *Форсайт Дж., Малькольм М., Моулер К. Машинные методы математических вычислений. М.: Мир, 1980.*

Microwave switching in the magnetic and elastic subsystems of a three-layer magnetic structure

L. N. Kotov^{a,*}, M. Yu. Dianov^a, V. S. Vlasov^a, V. V. Mironov^a

^a Syktyvkar State University, Syktyvkar, 167001 Russia

*e-mail: kotovln@mail.ru

Three modes of magnetic and elastic vibrations of the layers were revealed when a three-layer planar magnetic structure was excited by a microwave magnetic field. These modes are: microwave switching, low-frequency oscillations, microwave sinusoidal oscillations. Each mode of oscillation of the layers in a certain range of amplitudes of the alternating field is observed depending on the dc magnetic field and the magnetoelastic constant of the layer.

УДК 538.915

ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА СПЛАВОВ Mn_3Z ($Z = Ga, Ge$): ИССЛЕДОВАНИЯ ИЗ ПЕРВЫХ ПРИНЦИПОВ

© 2023 г. М. А. Обамби¹, М. А. Загребин¹, *, В. Д. Бучельников¹

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Челябинский государственный университет”, физический факультет, Челябинск, Россия

*E-mail: miczag@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Изучены *ab initio* структурные и электронные свойства сплавов Mn_3Z ($Z = Ga, Ge$). Показано, что в кубической и тетрагональной фазах энергетически выгодной является конфигурация с антипараллельной ориентацией магнитных моментов атомов Mn на различных подрешетках. Спиновая поляризация в тетрагональной фазе на уровне Ферми составляет $\approx 60\%$, что согласуется с экспериментом.

DOI: 10.31857/S0367676522700855, EDN: NLHTRJ

ВВЕДЕНИЕ

Сплавы Гейслера представляют собой семейство соединений, которые обладают целым рядом важных с точки зрения практического применения функциональных свойств [1]. Эти свойства обусловлены необычайным разнообразием основных электронных состояний, которые могут быть достигнуты путем изменения числа валентных электронов, состава и атомного порядка. Семейство сплавов Гейслера включает полупроводники, металлы и полуметаллы, а также ферромагнетики, антиферромагнетики и сверхпроводники и даже, возможно, компенсированные ферримагнитные полуметаллы и топологические изоляторы [2]. Одним из сплавов Гейслера является бинарное соединение Mn_3Ga , которое уже давно вызывает интерес из-за разнообразия наблюдающихся в нем структур и фазовых переходов, индуцированных температурой. В результате систематического изучения данного материала была определена общая фазовая диаграмма. При подходящих условиях приготовления можно получить три различные структурные фазы, каждая из которых проявляет различные магнитные свойства [3–9]. Литые образцы, полученные в результате повторной дуговой плавки, кристаллизуются в кубической неупорядоченной фазе $D0_3$, которая демонстрирует полуметаллическое полностью компенсированное ферримагнитное (Фим) поведение за счет противоположного направления магнитных моментов атомов Mn, расположенных на различных подрешетках [3]. Однако эксперименты показывают, что кубическая фаза Mn_3Ga нестабильна и не может быть получена без высо-

кой степени беспорядка. Отжиг сплава Mn_3Ga при высоких температурах дает гексагональную фазу $D0_{19}$. Данная фаза известна уже несколько десятилетий. Атомы Mn в гексагональной структуре имеют треугольную антиферромагнитную решетку кагоме со слабым суммарным магнитным моментом [4, 5]. При отжиге гексагональной треугольной антиферромагнитной структуры при 750 К наблюдается тетрагональная фаза $D0_{22}$, исследованию которой посвящена данная работа. Фаза $D0_{22}$ является Фим с магнитными моментами $-2.8 \mu_B$ и $1.6 \mu_B$ для атомов Mn, расположенных на разных подрешетках [8, 9]. Атомы Mn занимают позиции $2b$ и $4d$, которые обозначаем как Mn_1 и Mn_2 , соответственно. Эту фазу можно рассматривать как кубическую $D0_3$ с искажением по оси z . Искажение приводит к преимущественной ориентации магнитных моментов вдоль оси c , что обуславливает наличие перпендикулярной магнитокристаллической анизотропии в сплаве [7]. Последнее обстоятельство является значимым с точки зрения его практического приложения в магнитных запоминающих устройствах с произвольным доступом на основе спиновых вентилей [7]. Исследование электронной структуры фазы $D0_{22}$ с помощью теории функционала плотности, выполненное в работе [10], показало, что основное состояние тетрагональной фазы Mn_3Ga имеет Фим упорядочение и спиновую поляризацию на уровне Ферми 88%. В то же время экспериментальное значение спиновой поляризации значительно меньше и составляет 58% [11]. Аналогичная ситуация наблюдается и для сплава Mn_3Ge , для которого теоретическое значение спиновой

Таблица 1. Позиции атомов сплавов Mn_3Z ($Z = Ga, Ge$) в кубической ($D0_3$) и тетрагональной ($D0_{22}$) структур [9–11]

Атом	Структура $D0_3$	Структура $D0_{22}$
Mn_1	$8c: 0.25, 0.25, 0.25$	$4d: 0, 0.5, 0.25$
Mn_2	$4b: 0.5, 0.5, 0.5$	$2b: 0, 0, 0.5$
Z	$4a: 0, 0, 0$	$2a: 0, 0, 0$

поляризации тетрагональной фазы составляет 75%, а экспериментальное – 46% [12]. Теоретические оценки спиновой поляризации, проведенные ранее на основании полнопотенциального линейаризованного метода присоединенных плоских волн (the full potential linearized augmented plane-wave method – FLAPW) в [11, 12] примерно в 1.5 превышают экспериментальные, поэтому дополнительное рассмотрение и расчет структурных и электронных свойств сплавов $Mn_3(Ga, Ge)$ является актуальным.

В настоящей работе представлены структурные и электронные свойства сплавов Mn_3Z ($Z = Ga, Ge$), рассчитанные *ab initio* с помощью метода функций Грина Корринга–Кона–Ростокера, определены полная и парциальная кривые плотности электронных состояний сплавов для наиболее устойчивых кристаллической структуры и магнитного упорядочения.

ДЕТАЛИ ВЫЧИСЛЕНИЙ

Электронные свойства сплавов Mn_3Z ($Z = Ga, Ge$) рассчитаны с использованием метода функций Грина Корринга–Кона–Ростокера (KKR), реализованного в пакете SPR-KKR (Spin Polarized Relativistic Korringa–Kohn–Rostoker code) [13]. Ме-

тод функций Грина обладает тем преимуществом, что в нем используется трансляционная симметрия идеального кристалла, а изменения в электронной структуре идеального кристалла при создании локального дефекта рассчитываются непосредственно. Сравнение метода FLAPW и метода функций Грина Корринга–Кона–Ростокера (KKR), проведенное в работе [14] показывает, что метод KKR дает лучшее согласие с экспериментом по сравнению с FLAPW. Кроме того, результаты, полученные для сплава Co_2MnSi методом KKR в работе [15], хорошо описывают экспериментальные данные [16].

Параметры кристаллической решетки получены с помощью метода проекционных присоединенных волн, реализованного в пакете VASP (Vienna *ab initio* simulation package) [17, 18].

В пакете SPR-KKR все расчеты выполнены для элементарной ячейки Mn_3Z , состоящей из четырех атомов. Расположение атомов в кубической $D0_3$ и тетрагональной $D0_{22}$ ($I4/mmm$, группа симметрии № 139) фазах приведены в табл. 1. При расчетах использовалось приближение обобщенного градиента (GGA) в параметризации Пердью, Бурке и Эрнцерхофа (Perdew, Burke, Ernzerhof – PBE) [19].

Расчеты проводились для двух различных магнитных состояний: ФМ-состояния (магнитные моменты атомов Mn_1 и Mn_2 параллельны) и ФиМ-состояния (магнитные моменты атомов Mn_1 и Mn_2 антипараллельны). Предполагается, что магнитные моменты атомов $Z = Ga, Ge$ пренебрежимо малы. Рассмотренные магнитные состояния схематически показаны на рис. 1.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Зависимости полной энергии сплавов от параметра решетки $E(a)$ для различных магнитных состояний кубической структуры показывают, что наиболее устойчивым магнитным упорядочением является ФиМ, в котором магнитные моменты атомов Mn , расположенных на разных подрешетках, имеют противоположные направления. Равновесный параметр решетки равен $a_0 = 5.83 \text{ \AA}$ для Mn_3Ga и $a_0 = 5.76 \text{ \AA}$ в случае Mn_3Ge . Расчеты полной энергии от степени тетрагональных искажений $E(c/a)$ (a и c – параметры решетки) вдоль оси z (рис. 1) показывают, что для сплавов существует устойчивая тетрагональная фаза с ФиМ упорядочением. Равновесные значения параметров кристаллической решетки для структуры $D0_{22}$ в кристалле Mn_3Ga : $a = 3.75 \text{ \AA}$ и $c = 7.05 \text{ \AA}$; в случае Mn_3Ge : $a = 3.70 \text{ \AA}$ и $c = 7.00 \text{ \AA}$.

Отметим, что рассчитанные значения незначительно отличаются от экспериментальных параметров решетки: $a = 3.90 \text{ \AA}$ и $c = 7.08 \text{ \AA}$ [10] для

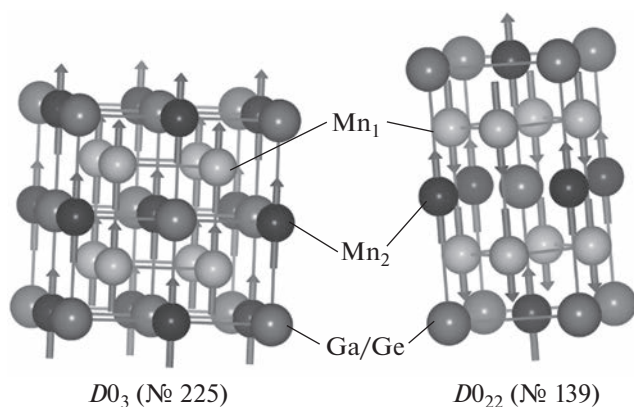


Рис. 1. Схематические изображения кристаллических структур $D0_3$ в ФМ состоянии и $D0_{22}$ в ФиМ состоянии. Стрелками показаны направления магнитных моментов атомов Mn_1 и Mn_2 .

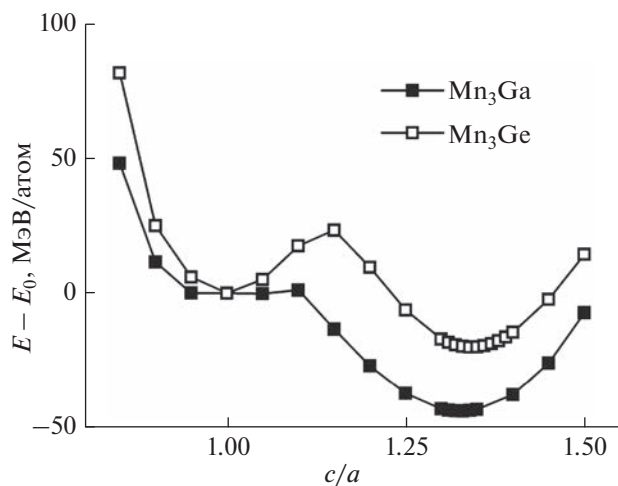


Рис. 2. Полная энергия (относительно равновесной энергии кубической фазы) в зависимости от степени тетрагональных искажений c/a сплавов Mn_3Z ($\text{Z} = \text{Ga}, \text{Ge}$) в ФиМ состоянии.

сплава Mn_3Ga структуры $D0_{22}$ и $a = 3.85 \text{ \AA}$ и $c = 7.185 \text{ \AA}$ для сплава Mn_3Ge [12]. Экспериментально установлено, что магнитное упорядочение в тетрагональной фазе является ФиМ, что хорошо согласуется с проведенным расчетом. Полученные теоретические значения параметров кристаллической решетки для тетрагональной фазы $D0_{22}$ были использованы для вычисления плотности электронных состояний (ПЭС) с помощью пакета SPR-KKR.

На рис. 2 показаны полная и парциальные кривые ПЭС для сплавов структуры $D0_{22}$ Mn_3Ga (рис. 2а) и Mn_3Ge (рис. 2б) в ФиМ состоянии. В целом, вид ПЭС для сплавов Mn_3Ga и Mn_3Ge схож. Наибольший вклад вблизи уровня Ферми в

состояния с проекциями спинов “вверх” и “вниз” для обоих сплавов вносят d -электроны атомов Mn_1 . Более того, состояние с проекцией спина “вверх” демонстрирует металлический характер из-за заполненной зоны на уровне Ферми. Для подзоны с проекцией спина “вниз” в области уровня Ферми наблюдается энергетическая псевдощель, что позволяет говорить о состоянии псевдо-полуметаллического ферримагнетика. Для сплава Mn_3Ga минимум данной псевдощели смещен в сторону больших энергий относительно энергии Ферми, в то время как в случае сплава Mn_3Ge минимум лежит на уровне Ферми. Наличие псевдощели, а также заполненные состояния в подзоне с проекцией спина “вверх” в области уровня Ферми позволяют говорить о наличии в сплавах высокой степени спиновой поляризации. Для оценки величины спиновой поляризации было использовано выражение:

$$P = \frac{N \uparrow(E_F) - N \downarrow(E_F)}{N \uparrow(E_F) + N \downarrow(E_F)} \times 100\%, \quad (1)$$

где $N \uparrow(E_F)$ и $N \downarrow(E_F)$ – значения ПЭС на уровне Ферми.

Из анализа ПЭС следует, что спиновая поляризация на уровне Ферми для сплава Mn_3Ga составляет 61%, а для сплава Mn_3Ge – 59%. Вычисления электронной структуры в рамках пакета VASP дают схожие результаты: 54% и 61% для сплавов Mn_3Ga и Mn_3Ge , соответственно. В работах [11, 12] приводятся значения спиновой поляризации, оцененные из точечной контактной (андреевской) спектроскопии. Для сплава Mn_3Ga значение поляризации составляет 58% [11], для сплава Mn_3Ge – 46% [12]. Отметим, что расчеты, выполненные с помощью метода FLAPW дают завышенный результат: $P = 88\%$ для сплава Mn_3 .

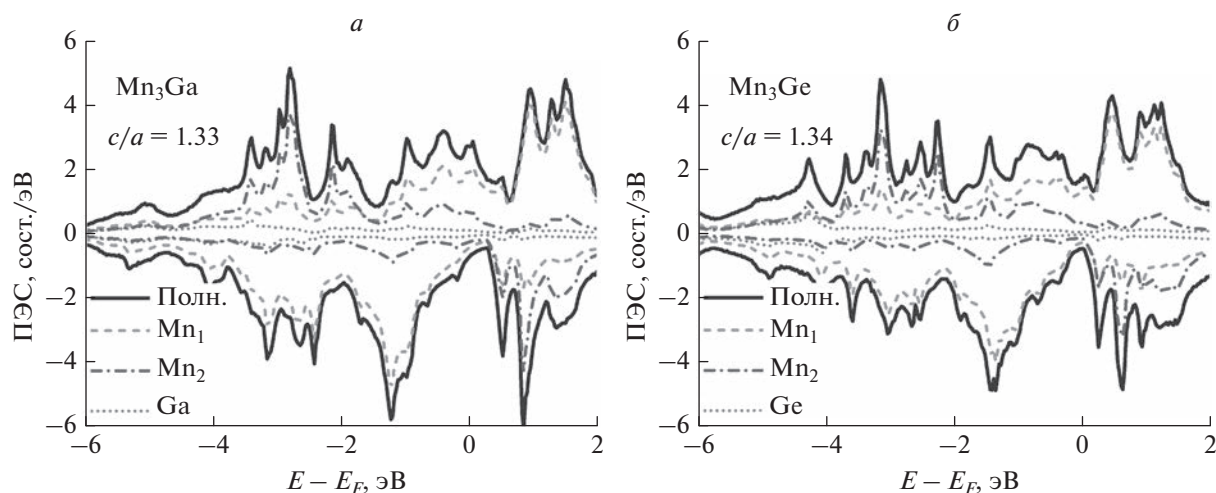


Рис. 3. Плотности электронных состояний для структуры $D0_{22}$ сплавов (а) Mn_3Ga и (б) Mn_3Ge .

Ga [10] и $P = 75\%$ для сплава Mn_3Ge [12]. Отсюда можно сделать вывод, что вычисления электронной структуры с использованием метода функций Грина Корринга–Кона–Ростокера, реализованного в пакете SPR-KKR, позволяют описать экспериментально наблюдаемую спиновую поляризацию в сплавах Mn_3Ga и Mn_3Ge .

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, с помощью метода теории функционала плотности проведено исследование электронных свойств сплавов Гейслера Mn_3Z ($Z = \text{Ga}, \text{Ge}$). Исследование основного магнитного состояния показало, что энергетически-выгодным магнитным состоянием кубической и тетрагональной структур для сплавов является ФИМ состояние, в котором магнитные моменты атомов Mn, расположенных на разных подрешетках, противоположно-направлены. Кристаллическая структура с тетрагональными искажениями вдоль оси z ($c/a \approx 1.35$) более выгодна по сравнению с кубической. Вычисленные параметры кристаллической решетки и основное магнитное состояние находятся в согласии с экспериментальными данными.

Исследование плотностей электронных состояний показывает, что основной вклад в них вносят d -электроны атомов Mn. Поляризация на уровне Ферми, оцененная из плотностей электронных состояний, согласуется с экспериментальными значениями, полученными ранее.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 22-12-20032).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Felser C., Hirohata A. Heusler alloys: properties, growth, applications. V. 222. Basel, Switzerland: Springer Nature, 2016.
2. Марченков В.В., Ирхин В.Ю. // Физ. мет. и металловед. 2021. Т. 122. № 12. С. 1221; Marchenkov V.V., Irkhin V.Y. // Phys. Met. Metallogr. 2021. V. 122. P. 1133.
3. Wurmehl S., Kandpal H.C., Fecher G.H., Felser C. // J. Phys. Cond. Matter. 2006. V. 18. P. 6171.
4. Krén E., Kádár G. // Solid State Commun. 1970. V. 8. No. 20. P. 1653.
5. Brown P.J., Nunez V., Tasset F. et al. // J. Phys. Cond. Matter. 1990. V. 2. P. 9409.
6. Zhang D., Yan B., Wu S.-C. et al. // J. Phys. Cond. Matter. 2013. V. 25. Art. No. 206006.
7. Winterlik J., Chadov S., Gupta A. et al. // Adv. Mater. 2012. V. 24. No. 47. P. 6283.
8. Niida H., Hori T., Onodera H. et al. // J. Appl. Phys. 1996. V. 79. No. 8. P. 5946.
9. Winterlik J., Balke B., Fecher G.H. et al. // Phys. Rev. B. 2008. V. 77. No. 5. Art. No. 054406.
10. Balke B., Fecher G.H., Winterlik J., Felser C. // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 90. Art. No. 152504.
11. Kurt H., Rode K., Venkatesan M. et al. // Phys. Rev. B. 2011. V. 83. Art. No. 020405(R).
12. Kurt H., Baadji N., Rode K. et al. // Appl. Phys. Lett. 2012. V. 101. Art. No. 132410.
13. Ebert H., Ködderitzsch D., Minár J. // Rep. Prog. Phys. 2011. V. 74. Art. No. 096501.
14. Zabloudil J., Hammerling R., Szunyogh L., Weinberger P. // Phys. Rev. B. 2006. Art. No. 115410.
15. Zagrebin M.A., Sokolovskiy V.V., Buchelnikov V.D. // J. Phys. D. 2016. V. 49. Art. No. 355004.
16. Jourdan M., Minár J., Braun J. et al. // Nature Commun. 2014. V. 5. Art. No. 3974.
17. Kresse G., Furthmüller J. // Phys. Rev. B. 1996. V. 54. Art. No. 11169.
18. Kresse G., Joubert D. // Phys. Rev. B. 1999. V. 59. P. 1758.
19. Perdew J.P., Burke K., Ernzerhof M. // Phys. Rev. Lett. 1996. V. 77. P. 3865.

Electronic properties of the Mn_3Z ($Z = \text{Ga}, \text{Ge}$) alloys: first-principles studies

M. A. Obambi^a, M. A. Zagrebin^{a, *}, V. D. Buchelnikov^a

^a Chelyabinsk State University, Chelyabinsk, 454001 Russia

*e-mail: miczag@mail.ru

The structural and electronic properties of Mn_3Z alloys ($Z = \text{Ga}, \text{Ge}$) are studied *ab initio*. It is shown that in the cubic and tetragonal phases, the configuration with antiparallel orientation of magnetic moments of Mn atoms on different sublattices is energetically favorable. Calculations of the electronic densities of states show that the spin polarization of the tetragonal phase is about 60%. The results obtained are in good agreement with the experimental data.

УДК 537.622

ВЛИЯНИЕ ГИДРИРОВАНИЯ НА СТРУКТУРУ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА СОЕДИНЕНИЙ $\text{Tb}(\text{Fe}, \text{Co})_{11}\text{Ti}$

© 2023 г. А. А. Макуренкова¹*, М. В. Железный², Н. Ю. Панкратов¹,
Е. С. Козлякова¹, И. С. Терёшина¹, С. А. Никитин¹

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова”, физический факультет, Москва, Россия

²Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
“Институт металлургии и материаловедения имени А.А. Байкова Российской академии наук”, Москва, Россия

*E-mail: makurenkova@physics.msu.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Исследовано влияние гидрирования на структуру и магнитные свойства соединений $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ с различным содержанием кобальта ($x = 0, 3, 4, 5$). Проведен рентгенодифракционный фазовый анализ и определены параметры кристаллической структуры гидридов. Показано, что гидрирование приводит к изотропному увеличению объема элементарной ячейки. Изучены экспериментальные полевые и температурные зависимости намагниченности монокристаллов гидридов в магнитных полях до 50 кЭ в областях температур 5–300 К. Определены константы магнитокристаллической анизотропии.

DOI: 10.31857/S0367676522700867, EDN: NLIQFT

ВВЕДЕНИЕ

Современные высокоэффективные постоянные магниты создаются на базе интерметаллических соединений 3d- и 4f-металлов, благодаря наличию в них комбинации уникальных магнитных свойств (высокие значения температур Кюри, намагниченности насыщения, магнитокристаллической анизотропии). Редкоземельные (РЗ) интерметаллические соединения с высоким содержанием железа, обладающие тетрагональной структурой типа ThMn_{12} , являются перспективными магнитотвердыми материалами [1–4]. В соединениях 1–12 соотношение числа атомов РЗ к числу атомов Fe является наиболее низким среди известных интерметаллидов, что важно для ресурсосбережения и минимизации содержания редкоземельных элементов.

Кристаллическая структура типа ThMn_{12} характеризуется объемно-центрированной кристаллической решеткой тетрагональной сингонии и относится к точечной группе пространственной симметрии 4 порядка $I4/mmm$. Для синтеза фазы ThMn_{12} с железом необходимо добавлять стабилизирующие элементы, такие как Ti, V, Cr, Mn, Mo, Ta, W, Al и Si [2–7]. В структуре данного типа редкоземельный атом R занимает позиции 2a, при этом все положения являются кристаллографически эквивалентными. Атомы

железа и стабилизирующего элемента имеют между собой различия в валентной конфигурации и ионных радиусах, они занимают три неэквивалентные позиции 8i, 8j и 8f с симметрией $2/m$, mm и mm . Переходные металлы Ti, V, Mo, Ta и W, занимают кристаллографические позиции 8i в структуре, в то время как p-атомы, такие как Al и Si, предпочитают позиции 8f [1, 2, 6, 8]. Известно, что Ti является одним из наиболее эффективных элементов для стабилизации фазы ThMn_{12} . Однако замещение магнитного Fe на немагнитный Ti снижает намагниченность [8–11]. Более того, замещение Fe атомами Ti в $\text{Sm}(\text{Fe}, \text{Ti})_{12}$ приводит к понижению коэрцитивной силы.

Решение задачи подбора оптимальных составов для перспективных магнитных материалов требует понимания фундаментальных механизмов, ответственных за формирование спонтанной намагниченности, магнитокристаллической анизотропии и обменных взаимодействий, на которые сильно влияют особенности расположения составляющих атомов в кристаллической структуре. Гидрирование, а также допирование железной подрешетки атомами кобальта являются механизмами для регулирования магнитокристаллической анизотропии посредством изменения локального окружения редкоземельного иона. Например, внедрение легких атомов (H, N, B, C)

в кристаллическую решетку резко меняет константы магнитной анизотропии [13, 14]. Соединения $RFe_{11}Ti$ способны поглощать до 1.5 атомов водорода на формульную единицу. При концентрациях водорода до $x < 1$ происходит заполнение октаэдрических позиций $2b$ около иона РЗМ вдоль оси c . При концентрациях водорода $x > 1$ в структуре начинают заполняться тетраэдрические позиции.

Замещение железа на кобальт в $3d$ -подрешетке соединений $RFe_{11}Ti$ существенно влияет на структуру $3d$ -зоны, поэтому РЗ интерметаллиды $R(Fe,Co)_{11}Ti$ и их гидриды представляют значительный интерес для исследования влияния электронной структуры на магнитные свойства, фазовые переходы и обменные взаимодействия [9, 14–22].

Известно, что ферримагнитное соединение $TbFe_{11}Ti$ обладает плоскостным типом магнитной анизотропии при низких температурах. С возрастанием температуры происходит спин-переориентационный переход (СПП) первого рода (при $T_{СПП} = 325$ К), при котором тип анизотропии меняется на одноосный [23–25]. Частичное замещение атомов железа кобальтом в соединении $TbFe_{11}Ti$ приводит к уменьшению температуры СПП и возрастанию температур Кюри [26, 27].

Введение атомов водорода в кристаллическую решетку соединения $TbFe_{11}Ti$ приводит к формированию стабильного гидрида $TbFe_{11}TiH$, а также увеличивает его температуру Кюри, намагниченность, магнитные сверхтонкие поля на ядрах Fe, изомерные сдвиги в результате расширения решетки. Кроме того, внедрение водорода усиливает магнитную анизотропию подрешетки тербия, вследствие чего СПП, наблюдаемый в $TbFe_{11}Ti$, исчезает в гидриде $TbFe_{11}TiH$ [23, 24, 28, 29].

Цель данной работы – определение влияния гидрирования на структурные и магнитные свойства замещенных составов $Tb(Fe,Co)_{11}Ti$ с различным содержанием кобальта.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Исходные интерметаллические соединения $TbFe_{11-x}Co_xTi$ ($x = 0, 3, 4, 5$) были получены методом индукционной плавки с чистотой исходных металлов не менее 99.98% в атмосфере очищенного аргона под давлением 1.5 атм. Расплав выдерживался при температуре, слегка превышающей температуру плавления в течение порядка 15 мин, а затем охлаждался со скоростью 1–2 К/мин.

Гидрирование осуществлялось водородом высокой чистоты, полученным в результате разложения гидрида $LaNi_5H_6$ в температурном диапазоне 80–800 К. Образцы были помещены в каме-

ру высокого давления, где активировались в вакууме $4 \cdot 10^{-4}$ Па в течение 4 ч при температуре 695 К, затем в течение 1 ч охлаждались до температуры 20°C. Далее в систему напускали водород при давлении до $2 \cdot 10^5$ Па. Образец нагревали до температуры 350°C в течение 2 ч, выдерживали 12 ч при высокой температуре и медленно охлаждали в течение 24 ч.

Содержание водорода в гидридах было определено по изменению давления водорода в результате реакции поглощения и составило 1 атом Н/ф.е. Гидрирование не приводило к разрушению монокристаллов, что позволило в дальнейшем получить ценную информацию о магнитной анизотропии.

Аттестация исходных образцов и гидридов проводилась методом рентгеноструктурного фазового анализа при комнатной температуре на дифрактометре Bruker D8 Advance. В качестве источника рентгеновского излучения использовалась трубка с $CuK\alpha$ излучением ($\lambda = 0.154$ нм). Параметры элементарной ячейки определялись по отражениям в области углов $2\theta = 20^\circ$ – 120° .

Для исследования магнитных свойств соединений $TbFe_{11-x}Co_xTi$ были выполнены измерения с применением установки для измерения физических свойств PPMS-9T (Quantum Design), а также VSM (Lake Shore). Изотермические измерения полевых зависимостей намагниченности монокристаллов $TbFe_{11-x}Co_xTiH$ ($x = 3, 4, 5$) проводились в магнитных полях до 70 кЭ в области температур 5–300 К вдоль различных кристаллографических направлений.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1а представлена, для примера, одна из рентгенограмм серии образцов $TbFe_{11-x}Co_xTiH$ (для концентрации кобальта $x = 4$). Синим цветом обозначен исходный профиль, красным – результат уточнения методом Ритвельда с использованием программного обеспечения TOPAS 6.0. Цветными штрихами обозначены позиции пиков различных идентифицированных фаз. Для всех соединений идентифицированы основные пики фазы 1–12. Заметно, что в области $2\theta = 40^\circ$ – 42° наблюдаются широкие пики, не характерные для основной фазы, что объясняется возможным присутствием в данных соединениях фазы $Tb(Fe,Co)_{10}Ti$. В литературе имеются данные о наличии фазы 1–11 для соединений с тяжелыми редкоземельными элементами $Gd-Fe-Ti$ и $Dy-Fe-Ti$ [30, 31]. Стоит отметить, что в кристаллической структуре фазы 1–11 имеются аналогичные структуре фазы 1–12 октаэдрические пустоты, образованные двумя атомами редкоземельных элементов и четырьмя атомами железа в позициях $8j$, что делает возможным внедрение в $Tb(Fe,Co)_{10}Ti$ ато-

мов водорода на позиции $2b$ по аналогии с основной фазой $\text{Tb}(\text{Fe}, \text{Co})_{11}\text{Ti}$.

В табл. 1 приведены процентные количественные соотношения основной и вторичных фаз для различных соединений $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{TiH}$. Таким образом, рентгеноструктурный анализ показал наличие во всех гидридах основной фазы ($>83\%$) с кристаллической структурой типа ThMn_{12} (группа $I4/mmm$). Также отмечено присутствие вторичных фаз: $\alpha\text{-Fe}$ (группа $Im-3m$), Fe_2Ti (группа $P63/mmc$), а также $\text{Tb}(\text{Fe}, \text{Co})_{10}\text{TiH}$ (группа $P4/mbm$).

Установлено, что повышение концентрации кобальта негативно сказывается на структурную стабильность, уменьшая процентное содержание основной фазы 1–12, и приводит к увеличению содержания вторичных фаз.

На рис. 1б представлены концентрационные зависимости параметров решетки a , c для соединений $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{TiH}$ ($x = 0, 3, 4, 5$). При замене Fe на Co параметры решетки и соответствующий объем элементарной ячейки уменьшаются. Это связано с тем, что атом Co обладает меньшим ионным радиусом ($0.74 \text{ \AA}$) по сравнению с Fe ($0.76 \text{ \AA}$) [34].

В табл. 2 приведены значения параметров решетки a , c , объем элементарной ячейки V , относительное изменение объема элементарной ячейки при гидрировании $\Delta V/V$, а также осевое соотношение c/a для серии образцов $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{TiH}$ ($x = 0, 3, 4, 5$). Поскольку осевое соотношение не изменилось, можно полагать, что гидрирование приводит к изотропному увеличению объема элементарной ячейки на величину порядка 0.5% . Данное значение коррелирует с литературными данными, известно, что после гидрирования сплавов RFe_{11}Ti кристаллическая решетка ThMn_{12} сохраняется, а увеличение объема элементарной ячейки не превышает 1% [13, 14].

Наши ранние исследования [27] показали, что замещение железа атомами кобальта в системе $\text{Tb}(\text{Fe}, \text{Co})_{11}\text{Ti}$ приводит к монотонному возрастанию величины температуры Кюри T_C . Как показали нейтронографические исследования [32], в соединениях с кристаллической структурой типа ThMn_{12} атомы Co заполняют преимущественно позиции $8f$ и $8j$, где расстояния между атомами Fe меньше критического значения $\sim 0.24 \text{ нм}$, и интеграл обменного взаимодействия между атомами

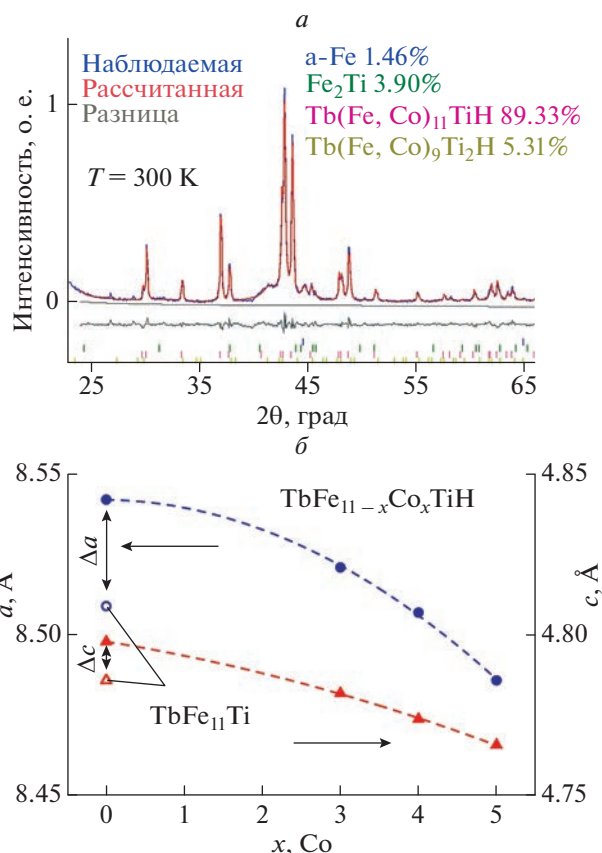


Рис. 1. Рентгенограмма соединения $\text{TbFe}_7\text{Co}_4\text{TiH}$ (а). Параметры решетки a и c для соединений $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$ [35] и $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{TiH}$ (б).

Fe имеет отрицательный знак. В то же время атомы Ti занимают позиции $8i$, расположенные наиболее близко к РЗ атому в позиции $2a$. Ионы Co имеют положительный обменный интеграл, поэтому при замещении ионов Fe на Co положительное обменное взаимодействие в $3d$ -подрешетке возрастает, вследствие чего температура Кюри также возрастает. Следует отметить, что различие в температурах Кюри для соединений $\text{Tb}(\text{Fe}, \text{Co})_{11}\text{Ti}$ и $\text{Y}(\text{Fe}, \text{Co})_{11}\text{Ti}$ (магнитный момент Y близок к нулю) не превышает 10% [33].

Влияние гидрирования на магнитокристаллическую анизотропию (МКА) монокристалла $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$ изучалось ранее [23, 29]. В $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$ при

Таблица 1. Фазовый состав в соединениях $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{TiH}$ ($x = 0, 3, 4, 5$)

Фаза	Группа	$\text{TbFe}_{11}\text{TiH}$	$\text{TbFe}_8\text{Co}_3\text{TiH}$	$\text{TbFe}_7\text{Co}_4\text{TiH}$	$\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$
$\text{Tb}(\text{Fe}, \text{Co})_{11}\text{TiH}$ (вес. %)	$I4/mmm$	93.5	91.5	89.3	83.6
$\text{Tb}(\text{Fe}, \text{Co})_{10}\text{TiH}$ (вес. %)	$P4/mbm$	4.1	4.8	5.3	9.2
$\alpha\text{-Fe}$ (вес. %)	$Im-3m$	1.2	0.9	1.5	1.7
Fe_2Ti (вес. %)	$P63/mmc$	1.2	2.8	3.9	5.5

Таблица 2. Параметры решетки a , c , объем элементарной ячейки V , изменение объема элементарной ячейки при гидрировании $\Delta V/V$ и осевое соотношение c/a в соединениях $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$ [35] и $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{TiH}$ ($x = 0, 3, 4, 5$)

Соединение	a , Å	c , Å	c/a	V , Å ³	$\Delta V/V$, %
$\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$ [35]	8.509	4.786	0.56	348.4	—
$\text{TbFe}_{11}\text{TiH}$	8.542	4.798	0.56	350.070	0.5
$\text{TbFe}_8\text{Co}_3\text{TiH}$	8.521	4.782	0.56	347.193	—
$\text{TbFe}_7\text{Co}_4\text{TiH}$	8.507	4.774	0.56	345.479	—
$\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$	8.486	4.766	0.56	343.188	—

температуре $T = 5$ К кривая намагничивания в магнитном поле, приложенном перпендикулярно тетрагональной оси монокристалла, быстро выходит на насыщение, что указывает на наличие анизотропии типа легкой плоскости. Кривая намагничивания вдоль трудной оси (тетрагональная ось) показывает линейную зависимость вплоть до поля анизотропии $H_a = 82$ кЭ [24]. При намагничивании одноосного магнетика вдоль тетрагональной оси c выражение для полной энергии с учетом констант анизотропии первого K_1 и второго K_2 порядка записывается в виде:

$$F = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta - HM_S \cos \theta, \quad (1)$$

где θ — угол между вектором намагниченности и осью c ; M_S — намагниченность насыщения. Уравнение равновесия $dF/d\theta = 0$ записывается, соответственно:

$$HM_S = 2 \cos \theta (K_1 + 2K_2 \sin^2 \theta). \quad (2)$$

Величина намагниченности при этом будет выражена как $M_S \cos \theta$. Такой подход позволяет описать кривую намагничивания вдоль трудного направления и определить константы анизотропии. Было показано [23], что константа анизотропии K_1 отрицательная, а константа K_2 положительная и на порядок меньше константы K_1 . Кроме того, первая константа изменят свой знак с ростом температуры, что соответствует спин-переориентационному (СПП) фазовому переходу при температуре 325 К [23, 29].

В гидриде $\text{TbFe}_{11}\text{TiH}$ наблюдается усиление плоскостной МКА с одновременным усилением обменных взаимодействий. При изучении магнитных свойств в процессе непрерывного контроля концентрации водорода [28] обнаружено, что в составах $\text{TbFe}_{11}\text{TiH}_y$ с ростом концентрации водорода происходит возрастание как температуры СПП, так и температуры Кюри (T_C). Было найдено, что при $T = 5$ К константа K_1 гидрида $\text{TbFe}_{11}\text{TiH}$ в 2 раза превышает K_1 исходного соединения [23].

Изотермы намагниченности $M(H)$ монокристаллов $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ демонстрируют сложный

характер. В монокристаллах $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ с концентрацией кобальта $x = 3$ и 4 тетрагональная ось является направлением трудного намагничивания при температуре 5 К. Однако, в отличие от $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$ на кривых намагничивания монокристаллов $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ вдоль оси трудного намагничивания наблюдаются скачки намагниченности в некотором критическом поле, что соответствует фазовым переходам первого рода индуцированных магнитным полем (FOMP) [27]. При возрастании температуры в исходных составах $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ ($x = 3$ и 4) магнитокристаллическая анизотропия сильно уменьшается, что проявляется в уменьшении величины критического поля ($H_{кр}$). Температура, при которых величина критического поля обращается в ноль, была идентифицирована нами как температуры СПП, выше которой в этих соединениях наблюдается одноосная анизотропия. Установлено, что с возрастанием концентрации кобальта в исходных соединениях температура СПП уменьшается.

Как известно, в магнетиках могут осуществляться два типа индуцированных магнитным полем переходов первого рода, а именно FOMP типа 1 и FOMP типа 2, которые различаются конечным состоянием намагниченности. При FOMP типа 2 намагниченность в конечном состоянии не достигает насыщения. При FOMP типа 1 происходит резкий скачок намагниченности в состоянии насыщения и условием перехода является равенство энергии в конечном и начальном состояниях. При намагничивании вдоль оси c условие перехода первого рода записывается в виде:

$$K_1(1 - m_1^2) + K_2(1 - m_1^2)^2 - H_{кр}M_S m_1 = -H_{кр}M_S, \quad (3)$$

где m_1 — приведенное значение намагниченности $m = M/M_S$, для начала перехода, в конце перехода $m = 1$. В составах $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ ($x = 3$ и 4) наблюдался FOMP типа 1. В нашей работе из величин скачка намагниченности и критического поля были рассчитаны константы МКА K_1 и K_2 при $T = 5$ К, которые показывают в табл. 3. В отличие от соединения $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$, в составах, легированных кобальтом, константа K_2 отрицательная и сравнима по величине с K_1 . С ростом температуры констан-

Таблица 3. Магнитные свойства соединений $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ и $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{TiH}$ ($x = 0, 3, 4, 5$) при температуре $T = 5$ К

Соединение	$M_S, \mu_B/\text{ф.е.}$	$H_{\text{кр}}, \text{кЭ}$	$K_1, 10^7 \text{ эрг/см}^3$	$K_2, 10^7 \text{ эрг/см}^3$	$T_{SR}, \text{К}$
$\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$ [23]	11.8	—	−2.3	0.10	325
$\text{TbFe}_{11}\text{TiH}$ [23]	14	—	−6	—	—
$\text{TbFe}_{10}\text{Co}_1\text{Ti}$ [27]	12.6	30	−0.75	−0.80	290
$\text{TbFe}_9\text{Co}_2\text{Ti}$ [27]	13.1	83	−2.60	−1.25	275
$\text{TbFe}_8\text{Co}_3\text{Ti}$ [27]	13.7	28	−1.05	−0.3	250
$\text{TbFe}_7\text{Co}_4\text{Ti}$	12	14	−0.28	−0.18	150
$\text{TbFe}_7\text{Co}_4\text{TiH}$	13.9	—	—	—	—
$\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{Ti}$	12	8	2.1	−1.6	—
$\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$	11	—	−6.2	1.7	—

ты МКА уменьшаются вплоть до температуры СПП. В составах $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ ($x = 3$ и 4) при температуре СПП обе константы проходят через нулевое значение. При температурах выше СПП соединения $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ обладают одноосной анизотропией, так же, как и $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$.

Дальнейшее увеличение концентрации кобальта приводит к подавлению легкоплоскостной анизотропии в $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{Ti}$. На рис. 2а показаны полевые зависимости намагниченности вдоль и перпендикулярно тетрагональной оси c при температуре 5 К. Из рисунка видно, что кривая $H \parallel c$ быстро выходит на насыщение, а кривая $H \perp c$ выходит на насыщение в поле выше 20 кЭ. На кривой вдоль трудной оси наблюдается область резкого роста намагниченности в интервале магнитных полей от 5 до 13 кЭ, который можно считать индуцированным переходом FOMP типа 2. Величина $H_{\text{кр}} = 8$ кЭ при температуре $T = 5$ К. В одноосном соединении $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{Ti}$ было обнаружено слабое увеличение $H_{\text{кр}}$ с ростом температуры в отличие от соединений с $x \leq 4$, которые обладают легкоплоскостной анизотропией. Таким образом, замещение Fe атомами Co вызывает усиление одноосной анизотропии в исходных соединениях $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$.

Рассмотрим влияние гидрирования на магнитные свойства соединения $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{Ti}$. На вставке к рис. 2а показаны полевые зависимости намагниченности монокристалла $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$. Как видно, гидрид $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$ обладает анизотропией типа легкая плоскость при температуре 5 К. Из рисунка видно, что поле анизотропии в гидриде $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$ существенно больше 50 кЭ. С ростом температуры МКА уменьшается, однако даже при температуре 300 К поле анизотропии гидрида $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$ превышает 50 кЭ.

В табл. 3 показаны величины намагниченности насыщения для исходных соединений $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ и их гидридов. Величина намагниченности насыщения были определена путем

экстраполяции к бесконечно большому полю зависимости $M(1/H)$. Из табл. 3 видно, что намагниченность исследованных соединений зависит

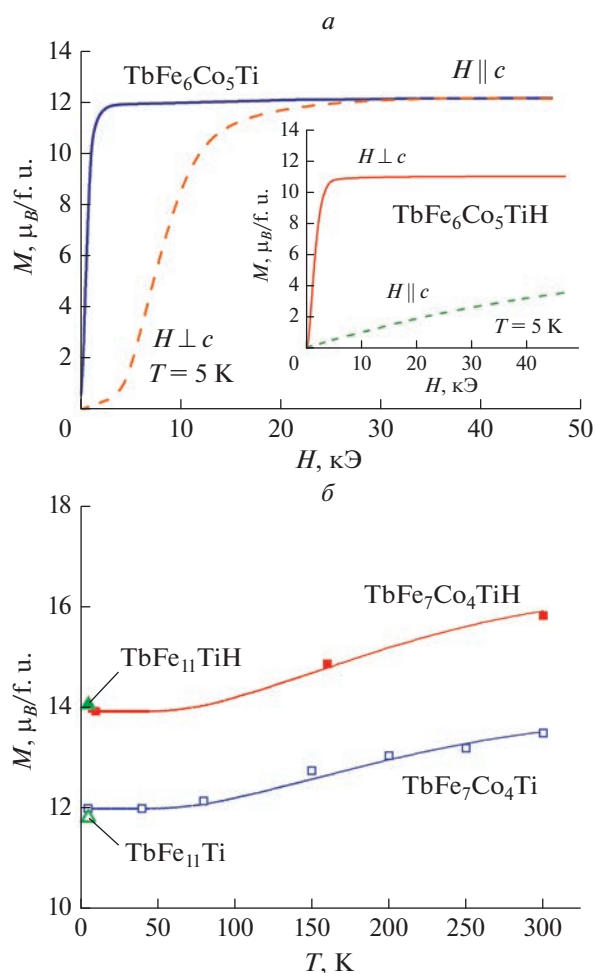


Рис. 2. Полевые зависимости намагниченности монокристалла $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{Ti}$ и его гидрида $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$ в поле приложенном вдоль и перпендикулярно тетрагональной оси при температуре 5 К (а). Температурные зависимости намагниченности насыщения соединения $\text{TbFe}_7\text{Co}_4\text{Ti}$ и его гидрида $\text{TbFe}_7\text{Co}_4\text{TiH}$ (б).

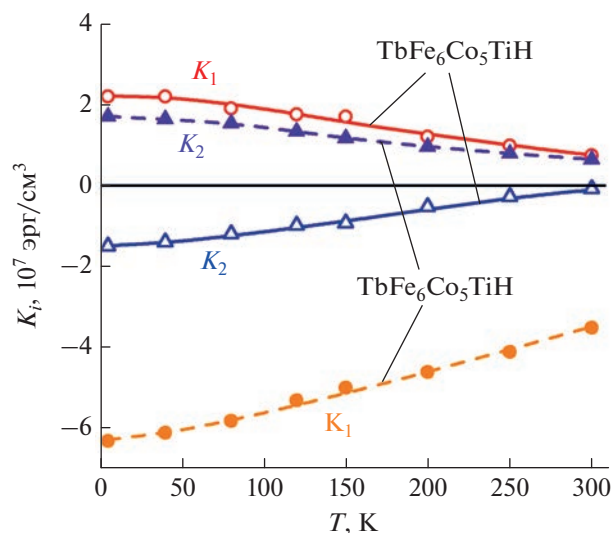


Рис. 3. Температурные зависимости констант магнитокристаллической анизотропии соединения $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{Ti}$ и его гидрида $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$.

как от концентрации водорода, так и кобальта. При замещении железа кобальтом в исходных соединениях $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ сначала происходит возрастание намагниченности [27], а затем магнитный момент убывает при $x \geq 3$. Температурные зависимости намагниченности насыщения соединения $\text{TbFe}_7\text{Co}_4\text{Ti}$ и его гидрида показаны на рис. 2б. Также на рисунке показаны значения намагниченности $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$ и его гидрида при температуре 5 К. Из рисунка видно, что гидрирование соединений $\text{TbFe}_{11-x}\text{Co}_x\text{Ti}$ с $x \leq 4$ приводит к возрастанию намагниченности. Такое же поведение намагниченности ранее наблюдалось для гидридов $\text{Er}(\text{Fe},\text{Co})_{11}\text{TiH}$ [13] и $\text{Ho}(\text{Fe},\text{Co})_{11}\text{TiH}$ [14, 39]. Однако в случае гидрида $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$ с максимально возможной концентрацией Co намагниченность заметно ниже, чем в исходном соединении.

На рис. 3 показаны температурные зависимости K_1 и K_2 для соединения $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{Ti}$ и его гидрида. Из рисунка видно, что при гидрировании соединения с высоким содержанием кобальта происходит изменение знака обеих констант. Таким образом, одноосная анизотропия, вызванная замещением Fe атомами Co, подавляется при внедрении водорода в кристаллическую решетку $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{Ti}$.

Для соединений, в которые входят РЗМ и 3d-переходные металлы, анизотропию этих двух систем обычно рассматривают отдельно в рамках двухподрешоточной модели, что связано с различной природой магнитной анизотропии 4f- и 3d-переходных металлов. В рамках двухподреш-

точной модели константы МКА K_j могут быть представлены в следующем виде:

$$K_j = K_{jR} + K_{jT}, \quad (4)$$

где K_{jR} и K_{jT} — константы анизотропии РЗ и 3d-подрешеток, соответственно.

Магнитные свойства РЗ подрешетки определяются свойствами локализованных 4f-электронов, для которых применимо представление о Рассел-Саундерсовской связи. Основной механизм магнитной анизотропии РЗ подрешетки связан с кристаллическим полем, действующим на РЗ ион со стороны соседних ионов. Электронные свойства РЗ иона зависят от симметрии и величины кристаллического поля и от обменного поля. Основным вкладом в МКА РЗ интерметаллидов является одноионный механизм, а константы МКА зависят от величины кристаллического поля в позиции РЗ иона.

Чтобы понять природу магнитных свойств соединений RFe_{11}Ti , важно изучить свойства 3d-подрешетки. Для выделения вклада в МКА от 3d-подрешетки многими авторами используются соединения $\text{Y}(\text{Fe},\text{Co})_{11}\text{Ti}$, где атом Y имеет замкнутую электронную оболочку и поэтому не дает вклада в анизотропию и намагниченность. Влияние замещений Fe на Co на МКА в монокристаллах $\text{Y}(\text{Fe},\text{Co})_{11}\text{Ti}$ заключается в том, что константы магнитной анизотропии 3d-подрешетки положительны и уменьшаются с увеличением концентрации Co [33]. С другой стороны, внедрение атомов водорода в кристаллическую решетку соединений $\text{Y}(\text{Fe},\text{Co})_{11}\text{Ti}$ приводит к заметному увеличению константы K_{1T} . Это происходит из-за изменения кристаллического поля, индуцированного атомами водорода в позициях 2b. Водород усиливает плоскостную анизотропию 3d-подрешетки при высоких концентрациях атомов Co [19, 37, 38], что напрямую связано с тем, что ионы кобальта предпочтительно замещают атомы Fe позиций 8j и 8f.

Установлено, что внедрение водорода в кристаллическую решетку соединений $\text{Tb}(\text{Fe},\text{Co})_{11}\text{Ti}$ изменяет знаки как константы K_1 , так и K_2 . Таким образом, показано схожее влияние гидрирования на магнитные свойства, как в соединении $\text{TbFe}_{11}\text{Ti}$, так и в замещенных составах $\text{Tb}(\text{Fe},\text{Co})_{11}\text{Ti}$. В то же время гидрирование приводит к возрастанию магнитного момента в $\text{Tb}(\text{Fe},\text{Co})_{11}\text{TiH}$ при концентрациях замещающего элемента ($x \leq 4$). Напротив, в гидриде $\text{TbFe}_6\text{Co}_5\text{TiH}$ (с более высокой концентрацией атомов Co) найдено уменьшение намагниченности насыщения.

В гидрированных соединениях, содержащих РЗМ и Fe, будет происходить смещение плотности заряда от атомов железа и РЗМ к водороду, тогда как в соединениях с Co, наоборот, от атомов водорода к атомам Co. Внедрение атомов водоро-

да в позиции 2b, соседние с РЗ атомами и с позициями 8f, сильно изменяет кристаллическое поле в результате перераспределения плотности заряда атомами Fe, Co и водорода. Расположение внедренных ионов водорода вдоль направлений тетрагональной оси приводит к увеличению температурного диапазона, в котором легкоплоскостная анизотропия редкоземельной подрешетки превосходит анизотропию 3d-подрешетки. Трансформация МКА в гидридах может быть связана с изменением параметров кристаллического поля при внедрении атомов водорода в октаэдрические пустоты кристаллической решетки РЗ соединений.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Определено влияние гидрирования на кристаллическую структуру и магнитные свойства соединений Tb(Fe,Co)₁₁Ti с различным содержанием Co. В исследованных соединениях гидрирование приводит к изотропному увеличению объема элементарной ячейки на величину порядка 0.5%. Установлено, что в исходных соединениях замещение Fe атомами Co приводит к усилению одноосной МКА, а гидрирование, напротив, подавляет одноосную анизотропию. Таким образом, влияние атомов замещения (Co) и атомов внедрения (H) на МКА в системе Tb(Fe,Co)₁₁Ti является противоположным. В результате анализа экспериментальных данных установлено, что при введении водорода в кристаллическую решетку замещенных составов Tb(Fe,Co)₁₁Ti происходит значительное изменение констант магнитокристаллической анизотропии как подрешетки Tb, так и в 3d-подрешетки.

Исследование частично выполнено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-32-90236). Работа Козляковой Е.С. выполнена при финансовой поддержке Гранта Президента РФ по государственной поддержке ведущих научных школ НШ-2394.2022.1.5.

Авторы выражают благодарность доценту К.П. Скокову за предоставленные монокристаллы Tb(Fe,Co)₁₁Ti и профессору Г. Друлису за помощь в синтезе гидридов Tb(Fe,Co)₁₁TiH.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Buschow K.H.J. // J. Appl. Phys. 1988. V. 63. P. 3130.
2. Buschow K.H.J. // J. Magn. Mater. 1991. V. 100. No. 1–3. P. 79.
3. Hadjipanayis G.C., Gabay A.M., Schönhöbel A.M. et al. // J. Low Temp. Phys. 2020. V. 6. No. 2. P. 141.
4. Takahashi Y.K., Sepehri-Amin H., Ohkubo T. // Sci. Technol. Adv. Mater. 2021. V. 22. P. 449.
5. Isnard O., Pop V. // J. Phys. Cond. Matter. 2009. V. 21. Art. No. 406003.
6. Bacmann M., Baudelet C., Fruchart D et al. // J. Alloys Compounds. 2004. V. 383. No. 1–2. P. 166.
7. Gorbunov D.I., Yasin S., Andreev A.V. et al. // J. Magn. Mater. 2014. V. 365. P. 56.
8. Coehoorn R. // Phys. Rev. 1990. V. 41. Art. No. 11790.
9. Makurenkova A.A., Ogawa D., Tozman P. et al. // J. Alloys Compounds. 2021. V. 861. Art. No. 158477.
10. Tozman P., Sepehri-Amin H., Takahashi Y.K. et al. // Acta Mater. 2018. V. 153. P. 354.
11. Landa A., Söderlind P., Moore E.E., Perron A. // Appl. Sci. 2022. V. 12. Art. No. 4860.
12. Wiesinger G., Hilscher G. // in: Handbook of magnetic materials. V. 17. Elsevier, 2007. P. 293.
13. Pankratov N.Y., Nikitin S.A., Iwasieczko W. et al. // J. Alloys Compounds. 2005. V. 404–406. P. 181.
14. Tajabor N., Alinejad M.R., Motevalizadeh L. et al. // J. Alloys Compounds. 2007. V. 458. P. 91.
15. Tereshina I.S., Pyatakov A.P., Tereshina-Chitrova E.A. et al. // AIP Advances. 2018. V. 8. Art. No. 125223.
16. Bara J.J., Bogacz B.F., Pedziwiatr A.T. // J. Alloys Compounds. 2000. V. 307. P. 45.
17. Gu Z. F., Zeng D. C., Liu Z. Y. et al. // J. Alloys Compounds. 2001. V. 321. P. 40.
18. Tajabor N., Fruchart D., Gignoux D. et al. // J. Magn. Mater. 2007. V. 314. P. 122.
19. Ke L., Johnson D.D. // Phys. Rev. B. 2016. V. 94. Art. No. 024423.
20. Ogawa D., Yoshioka T., Xu X.D. et al. // J. Magn. Mater. 2020. V. 497. Art. No. 165965.
21. Hirayama Y., Takahashi Y.K., Hirosawa S., Hono K. // Scripta. Mater. 2017. V. 138. P. 62.
22. Каминская Т.П., Терёшина И.С. // Вестн. МГУ. Сер. 3. 2020. Т. 6. С. 99; Kaminskaya T.P., Tereshina I.S. // Moscow Univ. Phys. Bull. 2020. V. 75. P. 631.
23. Nikitin S.A., Tereshina I.S., Verbetsky V.N. et al. // J. Alloys Compounds. 2001. V. 322. P. 42.
24. Kazakov A.A., Kudrevatykh N.V., Markin P.E. et al. // J. Magn. Mater. 1995. V. 146. P. 208.
25. Andreev A.V., Zadvorkin S.M. // Physica B. 1996. V. 225. P. 237.
26. Ivanova T.I., Telegina I.V., Tskhadadze I.A. et al. // J. Alloys Compounds. 1998. V. 280. P. 20.
27. Никитин С.А., Иванова Т.И., Панкратов Н.Ю. и др. // ФТТ. 2005. Т. 47. № 3. С. 501; Nikitin S.A., Ivanova T.I., Pankratov N.Y. et al. // Phys. Solid State. 2005. V. 47. No. 3. P. 517.
28. Apostolov A., Bezduzhnyi R., Damianova R. et al. // Phys. Stat. Sol. A. 1994. V. 143. P. 385.
29. Piquer C., Hermann R.P., Grandjean F. et al. // J. Phys. Cond. Matter. 2003. V. 15. P. 7395.
30. Zhuang Y.H., Huang X., Li J. // Z. Met.kd. 1996. V. 87. P. 213.
31. Suharyana, Cadogan J.M., Li H.-S., Bowden G.J. // J. Appl. Phys. 1994. V. 75. P. 7122.
32. Yang Y., Kong L., Song H. et al. // J. Appl. Phys. 1990. V. 67. P. 4632.

33. Tereshina I.S., Nikitin S.A., Telegina I.V. et al. // J. Alloys Compounds. 1999. V. 283. P. 45.
34. Tabatabai Y.Sh., Motevalizadeh L. // J. Magn. Magn. Mater. 2015. V. 379. P. 221.
35. Zhang L.Y., Boltich E.B., Sinha V.K., Wallace W.E. // IEEE Trans. Magn. 1989. V. 25. P. 3303.
36. Tereshina E., Telegina, I., Palewski // J. Alloys Compounds. 2005. V. 404–406. Spec. Iss. P. 208.
37. Никитин С.А., Терешина И.С., Вербейский В.Н., Саламова А.А. // ФТТ. 1998. № 2. С. 285; Nikitin S.A., Tereshina I.S., Verbetskiy V.N., Salamova A.A. // Phys. Solid State 1998. V. 40. No. 2. P. 258.
38. Tereshina I.S., Nikitin S.A., Ivanova T.I., Skokov K.P. // J. Alloys Compounds. 1998. V. 275–277. P. 625.
39. Kostyuchenko N.V., Tereshina I.S., Tereshina–Chitrova E.A. et al. // AIP Advances. 2022. V. 12. Art. No. 035050.

Effect of hydrogenation on the structure and magnetic properties of Tb(Fe,Co)₁₁Ti compounds

A. A. Makurenkova^{a, *}, M. V. Zhelezny^b, N. Y. Pankratov^a,
E. S. Kozlyakova^a, I. S. Tereshina^a, S. A. Nikitin^a

^a Lomonosov Moscow State University, Physics Faculty, Moscow, 119991 Russia

^b Baykov Institute of Metallurgy and Materials Science of the Russian Academy of Science, Moscow, 119334 Russia

*e-mail: makurenkova@physics.msu.ru

The effect of hydrogenation on the structure and magnetic properties of TbFe_{11-x}Co_xTi compounds with different cobalt content ($x = 0, 3, 4$, and 5) has been studied. An X-ray diffraction phase analysis was carried out and the parameters of the crystal structure of hydrides were determined. It is shown that hydrogenation leads to an isotropic increase in the unit cell volume. The experimental field and temperature dependence of the magnetization of single crystals hydride are studied in magnetic fields up to 90 kOe in the temperature range 5–300 K. The constants of magnetocrystalline anisotropy are determined.

УДК 539.23

ИССЛЕДОВАНИЕ ЭФФЕКТОВ МАГНИТНОЙ АНИЗОТРОПИИ В ТРЕХСЛОЙНЫХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНОСТРУКТУРАХ НА ОСНОВЕ ПЛЕНОК ЖЕЛЕЗА

© 2023 г. М. Ю. Макеев¹, М. В. Мамонова¹, *

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
“Омский государственный университет имени Ф.М. Достоевского”, Омск, Россия

*E-mail: mamonovamv@omsu.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

В рамках теории функционала спиновой плотности изучены энергетические и магнитные свойства систем Fe/Cr/Fe, Fe/Pt/Fe с использованием пакета программ VASP. Расчеты зависимости полной энергии от угла направления магнитного момента атомов показали преимущество перпендикулярной анизотропии для Fe/Cr/Fe при всех рассмотренных толщинах пленок Fe и ориентации поверхности. Для Fe/Pt/Fe наблюдается более сложная зависимость, но с увеличением толщины пленки железа наблюдается преобладание анизотропии типа легкая плоскость.

DOI: 10.31857/S0367676522700879, EDN: NLKING

ВВЕДЕНИЕ

Благодаря широкой области применения исследование ультратонких магнитных пленок имеет не только фундаментальный, но и практический интерес. Магнитные пленки используются в разных областях, например, в устройствах спинтроники, микро- и нанoeлектронике, в спин-вентильных системах [1, 2], различных датчиках магнитных и электрических полей [3], а также в качестве магнитных носителей.

Магнитная анизотропия (МА) является одним из ключевых параметров магнитных материалов. Это релятивистское проявление связи между спином электрона и орбитальным моментом (спин-орбитальная связь). Модификация электронной структуры на поверхностях, вызывающая изменение магнитной анизотропии, приводит к особому магнитному поведению в ультратонких магнитных пленках, например, к перпендикулярной магнитной анизотропии, индуцированной границей раздела.

Изучение анизотропии представляет большой интерес для современных исследователей [4]. Расчет магнитной анизотропии в металлических многослойных пленках проводился как экспериментально, так и теоретически и представлены в обзорах [5, 6]. Магнитные свойства пленок Fe, а также поведение обменно-связанных структур на их основе являются предметом интенсивных исследований [7]. Комбинация материалов Fe/Cr/Fe

была первой, в которой проявился эффект гигантского магнитосопротивления ГМС – открытие, положившее начало спинтронике. Поскольку магнитное состояние структур Fe/Cr/Fe может быть изменено относительно слабым магнитным полем, эти слои можно рассматривать как модельные системы для изучения многих аспектов тонкопленочного магнетизма.

Можно предположить, что знак энергии магнитной анизотропии E_{MA} определяется самой ферромагнитной пленкой (ее материалом и ориентацией) и не зависит от немагнитной подложки. Этому утверждению способствуют исследования E_{MA} Ni(111), которые показывают легкую плоскость для Cu, Ag, Pd [8], и Co(111), которое показывает всегда перпендикулярную E_{MA} [9] для Ag, Au, Cu, Ir, Mo, Pd и Pt подложек. Но это правило нарушается для пленок Fe, которые на W(110) намагничены всегда в плоскости в результате легкоплоскостной анизотропии магнитной поверхности, а на Cr(110) пленки Fe демонстрируют перпендикулярную намагниченность до толщины примерно 3 монослоя [10]. Экспериментальная работа по магнитной поверхностной анизотропии показывает перпендикулярную E_{MA} для Fe(100) на Ag, Au [11].

В работе [12] для одиночного монослоя Fe на Pt(111) показаны случаи преобладания анизотропии в плоскости. Эти расчеты основаны на подходе функции Грина в рамках экранированного

полностью релятивистского метода Кона—Корринги—Ростокера и приближениях локальной плотности и идеализированной геометрии, воспроизводящей объемную структуру подложки. В [13] также рассчитывалась монослойная пленка Fe на Pt(100), было продемонстрировано влияние релаксации на преобладающий тип анизотропии. Таким образом, несмотря на чрезвычайный интерес к подобным системам в связи с наблюдаемыми в них явлениями не прямой связи, окончательных выводов еще не сделано.

Данная работа посвящена исследованию $E_{\text{МА}}$ пленок Fe, разделенных слоями Cr и Pt с использованием формализма теории функционала спиновой плотности (SDFT) и расчета самосогласованной зонной структуры. Кроме того, в отличие от наиболее распространенных расчетов, когда рассматривается только одна грань, мы исследовали различные ориентации поверхностных граней, в частности (100), поскольку она дает квадратную ячейку поверхности, которая используется в расчетах методом Монте-Карло. Результаты наших расчетов методом Монте-Карло [14] показали, что случай перпендикулярной анизотропии приводит к полезному увеличению магнитосопротивления. Но для сравнения результатов численного моделирования с экспериментом необходимо знать тип анизотропии и значение параметра анизотропии для конкретных систем. Поэтому в данной работе ставилась задача, исследовать эффекты анизотропии для трехслойных структур Fe/Pt/Fe, Fe/Cr/Fe методом функционала спиновой плотности с использованием программного комплекса VASP [15]. Определить магнитные моменты и вычислить значения энергии магнитной анизотропии в зависимости от ориентации поверхностной грани и толщины слоев. Рассчитать параметр анизотропии Δ для анизотропии типа легкая ось и анизотропии типа легкая плоскость.

РАСЧЕТЫ ЭНЕРГИИ МАГНИТНОЙ АНИЗОТРОПИИ

В основе расчетов из первых принципов электронной и кристаллической структуры магнитных материалов лежит теория функционала спиновой плотности. Мы использовали для моделирования трехслойных структур программный пакет VASP с помощью метода проекционных присоединенных волн (PAW) с псевдопотенциалом Пердью—Берке—Эрнцерхофа (PBE) версией обобщенного градиентного приближения (GGA). Интегрирование в первой зоне Бриллюэна проводилось с использованием k -сетки, построенной по методу Монкхорста—Пака. Исследование сходимости разности ΔE энергий ферромагнитных ФМ и антиферромагнитных АФМ конфигураций пленок Co и Fe разделенных пластиной

Si и Pt по количеству k -точек, проведенное нами в [16], показало, что для ΔE сходимость намного хуже, чем для полной энергии, и мы должны использовать большие значения количества k -точек. В данных расчетах размер k -сетки составлял $32 \times 32 \times 1$. Энергия обрезания базиса плоских волн была выбрана равной 500 эВ при толщине слоя вакуума 5 Å.

Система представляла собой пластину из немагнитного металла с ориентацией поверхностной грани с низкими значениями индекса Миллера, с адсорбированными в положении междоузлий на ней ферромагнитными пленками с двух сторон для сохранения инверсионной симметрии. Для моделирования многослойной структуры использовалась периодическая суперъячейка с постоянной решеткой, соответствующей подложке, полученной в результате расчетов с учетом оптимизации параметров решетки. Рассчитанные равновесные параметры решетки 3.87125(3) Å для Pt и 2.8365(7) Å для Cr, что близко к экспериментальным значениям 3.9158 и 2.8839 Å.

В локализованном случае спины связаны через спин-орбитальное взаимодействие с орбиталями, на которые, в свою очередь, влияет кристаллическая решетка. Для зонных материалов спин-орбитальное взаимодействие индуцирует небольшой орбитальный момент, который затем связывает полный магнитный момент с осями кристалла. Это приводит к полной энергии, которая зависит от ориентации намагниченности относительно осей кристалла. Это дает вклад в анизотропию

Когда присутствует спин-орбитальная связь, внутриатомная намагниченность $m(r)$ не является коллинеарной, и твердое тело может выбирать разные оси квантования, зависящие от атома, что приводит к тому, что магнитные моменты направлены в разные стороны. В отсутствие спин-орбитального взаимодействия направления спинов не связаны с кристаллической структурой, т.е. система инвариантна относительно общего вращения всех спинов. Поэтому все наши расчеты эффектов магнитной анизотропии, приведенные в данной работе, проведены с учетом спин-орбитального взаимодействия.

Энергия магнитной анизотропии $E_{\text{МА}} = E_{\perp} - E_{\parallel}$ рассчитывалась как разность полной энергии систем с намагниченностью, направленной перпендикулярно и параллельно плоскости поверхности. При $E_{\text{МА}} < 0$ более энергетически выгодна ориентация магнитных моментов перпендикулярно поверхности, что соответствует анизотропии легкая ось. При $E_{\text{МА}} > 0$ ориентация магнитных моментов параллельно поверхности более энергетически выгодна, что соответствует анизотропии легкая плоскость.

Результаты расчетов энергии магнитной анизотропии для монослойных пленок железа, в за-

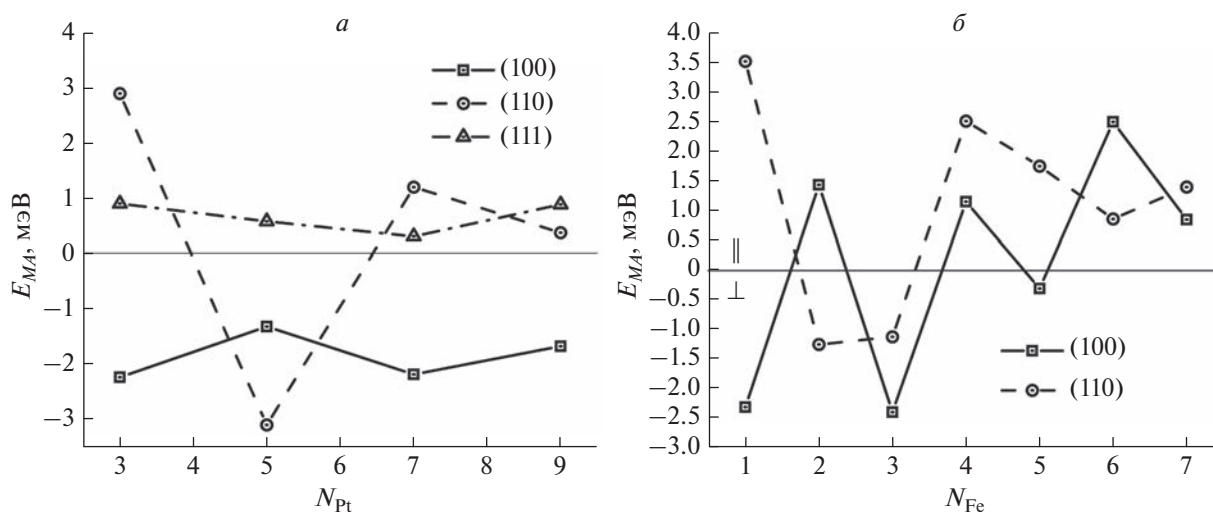


Рис. 1. Зависимость энергии магнитной анизотропии системы Fe/Pt/Fe от толщины слоя платины (а) и железа (б) для различных ориентаций поверхностной грани.

висимости от толщины разделяющего их слоя платины приведены на рис. 1а. Можно увидеть, что перпендикулярная анизотропия для монослойных пленок железа с прослойкой платины возникает только для грани (100) для всех толщин пластины Pt и для грани (110) для толщины пластины Pt в 5 монослоев. А для более плотноупакованной грани (111) для всех толщин немагнитной прослойки более энергетически выгодна анизотропия типа легкая плоскость со значениями $E_{MA} = E_{\perp} - E_{\parallel} \approx 0.5\text{--}1.0$ мэВ. Наши расчеты подтверждаются расчетами других авторов. В статье [17] исследовали адсорбцию кластеров железа разного размера вплоть до монослоя на поверхностной грани Pt(111). Расчеты были выполнены с применением метода Корринги—Кона—Ростокера при толщине подложки Pt в 37 монослоевых слоев без учета релаксации системы. Для монослоя было показано преобладание анизотропии типа легкая плоскость со значением $E_{MA} = E_{\perp} - E_{\parallel} = 0.26$ мэВ. В статье [12] расчеты одиночного монослоя Fe на Pt(111) также демонстрируют преимущество плоскостной магнитной анизотропии, но с большим значением $E_{MA} = 0.71$ мэВ. В [13] получено для монослоя Fe на Pt(100) с учетом релаксации энергетическую выгоду перпендикулярной магнитной анизотропии.

Чтобы лучше понять природу магнитной анизотропии в системе Fe/Pt, мы решили изучить влияние толщины магнитной пленки, фиксируя толщину немагнитной подложки. Была рассчитана энергия магнитной анизотропии E_{MA} для граней (100) и (110) для толщины подложки в 3 монослоя и толщинах пленки от 1 до 7 монослоев. Результаты представлены на рис. 1б. Из графиков можно увидеть, что наибольшие значения E_{MA}

наблюдаются для монослойной пленки. С увеличением толщины магнитной пленки меняется не только значение E_{MA} , но и тип преобладающей анизотропии. Так, начиная с толщины пленки железа в 6 монослоев, наблюдается преобладание анизотропии типа легкая плоскость и сходимость E_{MA} к значению около 1.0 мэВ. Для меньших толщин наблюдаются осцилляции E_{MA} с периодом в 2 монослоя для грани (100) и 3 монослоя для грани (110). Такая величина периода для этих граней близка к постоянной решетке железа.

Дальше были проведены расчеты, в которых направление вектора намагниченности изменялось в плоскости XZ , а угол Θ отсчитывался от оси Z . Рассматривались системы Fe/Cr/Fe и Fe/Pt/Fe при толщине прослойки в 3 и толщинах пленки в 1–4 атомных слоя. На рис. 2 приведена зависимость разности полных энергий $E(\Theta) - E_{\min}$, где $E(\Theta)$ – рассчитанное значение полной энергии при заданном угле Θ направлении вектора намагниченности, а $E_{\min}$ – минимальное из всех полученных значений. Таким образом, равенство нулю данной величины, показывает направление преобладающей анизотропии. Графики демонстрируют плавное изменение и наличие минимума или при угле $\Theta = 0^\circ$, что соответствует перпендикулярной анизотропии, или при $\Theta = 90^\circ$, что соответствует параллельной анизотропии. Значения энергии магнитной анизотропии приведены в табл. 1. Максимальная E_{MA} для монослойной пленки. Расчеты показали, что для системы Fe/Cr/Fe для всех ориентаций поверхностной грани и толщин пленки железа является более энергетически выгодной перпендикулярная анизотропия, что наблюдается в эксперименте [10]. Для системы Fe/Pt/Fe выводы о преобладающей

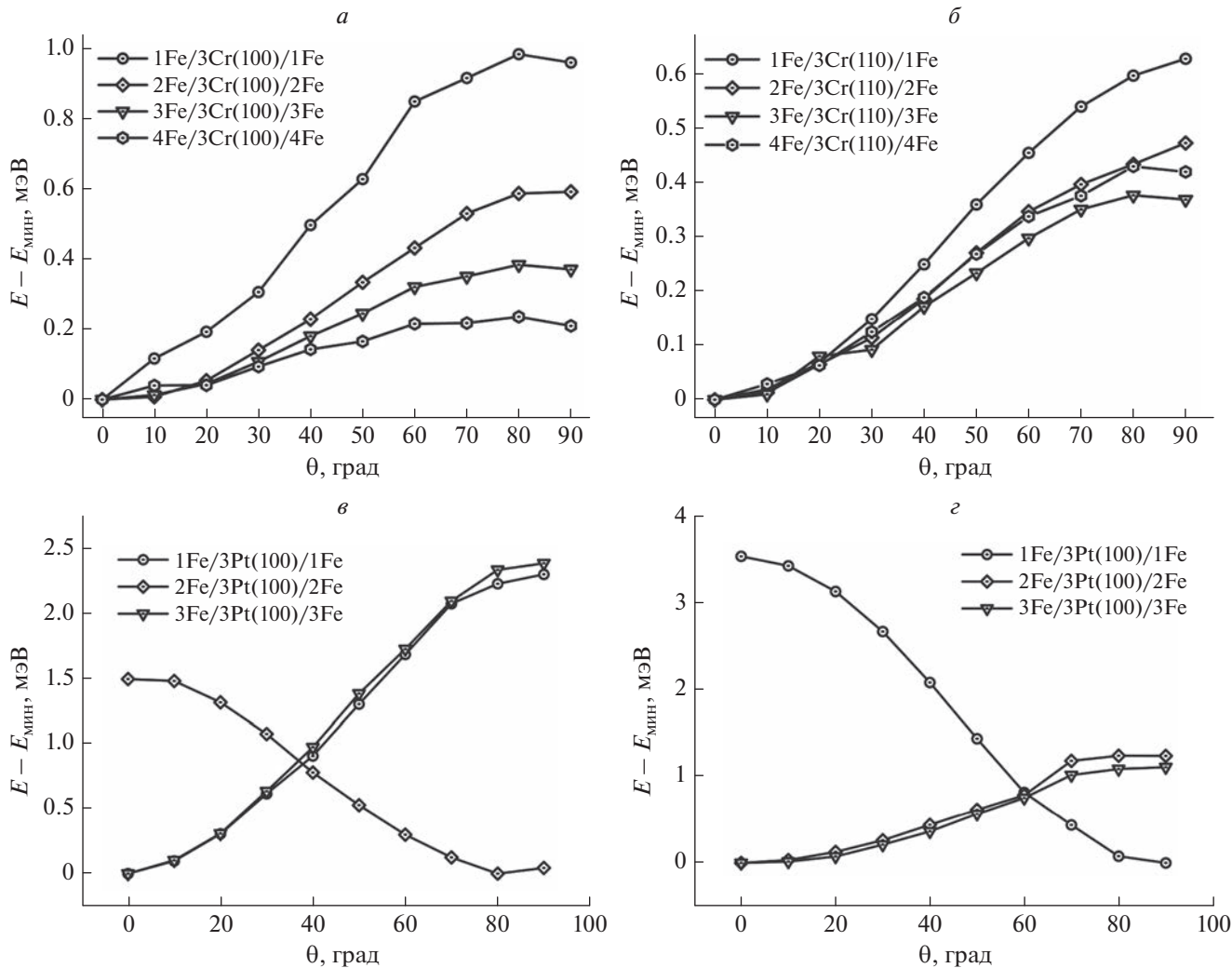


Рис. 2. Значение энергии магнитной анизотропии в зависимости от угла направления магнитного момента Θ в плоскости XZ для систем Fe/3Cr/Fe (а, б) и Fe/3Pt/Fe (в, г) с ориентацией поверхностных граней (100) и (110) при изменении толщины магнитной пленки.

Таблица 1. Значение энергии магнитной анизотропии ($E_{MA} < 0$ соответствует перпендикулярной конфигурации) в зависимости от толщины магнитной пленки Fe при толщине прослойки в 3 монослоя и ориентации поверхностной грани (100) и (110)

Кол-во монослоев Fe	Грань	E_{MA} , мЭВ	E_{MA} , мЭВ
		Fe/Cr/Fe	Fe/Pt/Fe
1	100	-0.984	-2.295
	110	-0.628	3.531
2	100	-0.592	1.447
	110	-0.473	-1.237
3	100	-0.384	-2.38
	110	-0.377	-1.108
4	100	-0.236	1.161
	110	-0.43	2.522

анизотропии соответствуют представленным на рис. 1б значениям, а по модулю значения E_{MA} в несколько раз больше, чем для Fe/Cr/Fe т. к. атомы Pt играют важную роль в магнитной анизотропии пленки Fe. Гибридизация с орбиталями Fe вызывает спиновую поляризацию на атоме Pt и, как следствие, усиливает E_{MA} из-за большой спин-орбитальной связи в атоме Pt.

Из результатов расчета магнитных моментов атома железа в зависимости от угла Θ , представленных в табл. 2, можно увидеть, что и намагниченность в пленке Fe на Pt выше, чем на Cr. Это обусловлено тем, что хром проявляет свойства послойного антиферромагнетика с противоположным направлением магнитного момента в слое ближайшем к пленке железа, что можно увидеть из представленных в табл. 3 значений магнитных моментов атома хрома.

Таблица 2. Значение проекции магнитного момента μ_x и μ_z атома Fe в монослойной пленке в зависимости от угла Θ для систем, 1Fe/3Pt(100)/1Fe и 1Fe/3Cr(100)/1Fe

Θ	μ_x, μ_B	μ_x, μ_B	μ_z, μ_B	μ_z, μ_B
	Fe/Cr/Fe	Fe/Pt/Fe	Fe/Cr/Fe	Fe/Pt/Fe
0	0	0	2.244	2.906
10	0.373	0.483	2.213	2.863
20	0.733	0.955	2.121	2.740
30	1.091	1.404	1.96	2.537
40	1.409	1.816	1.746	2.258
50	1.691	2.179	1.473	1.908
60	1.918	2.479	1.162	1.496
70	2.096	2.713	0.798	1.012
80	2.204	2.850	0.412	0.511
90	2.243	2.895	0	0

РАСЧЕТЫ ПАРАМЕТРА МАГНИТНОЙ АНИЗОТРОПИИ

На основе полученных данных рассчитаем параметр анизотропии Δ . Воспользуемся гамильтонианом системы с анизотропией типа легкая плоскость и легкая ось:

$$H_{\parallel} = -\sum_{i,j} J_{i,j} \{S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y + (1 - \Delta_{\parallel}) S_i^z S_j^z\}, \quad (1)$$

$$H_{\perp} = -\sum_{i,j} J_{i,j} \{(1 - \Delta_{\perp})(S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y) + S_i^z S_j^z\}, \quad (2)$$

где S_i – трехмерный единичный вектор в узле i , J – характеризует обменное взаимодействие ближай-

Таблица 3. Значение магнитного момента μ_i атомов Cr при толщине прослойки в 3 монослоя и ориентации поверхностной грани (100) и (110) в зависимости от толщины магнитной пленки Fe

i	$N_{Fe} = 1$		$N_{Fe} = 2$	
	100	110	100	110
	μ, μ_B	μ, μ_B	μ, μ_B	μ, μ_B
1	−0.82	−0.22	−0.36	−0.25
2	0.79	0.06	0.18	0.07
3	−0.82	−0.22	−0.36	−0.25

ших спинов, носящее ферромагнитный характер, Δ – параметр анизотропии. Значение $\Delta = 0$ соответствует изотропной модели Гейзенберга, а $\Delta = 1$ – модели Изинга.

Из представленных выше гамильтонианов, выведем уравнение для нахождения Δ . Предположим, что все спины направлены вдоль оси x , тогда $S_i^x = S_j^x = S$; $S_i^y = S_j^y = 0$; $S_i^z = S_j^z = 0$. Подставим эти значения в (1) и получим:

$$E_x = -\sum_{i,j} J_{i,j} S^2. \quad (3)$$

Теперь направим спины вдоль оси z и, проделав аналогичные действия, получим:

$$E_z = -\sum_{i,j} J_{i,j} S^2 (1 - \Delta_{\parallel}). \quad (4)$$

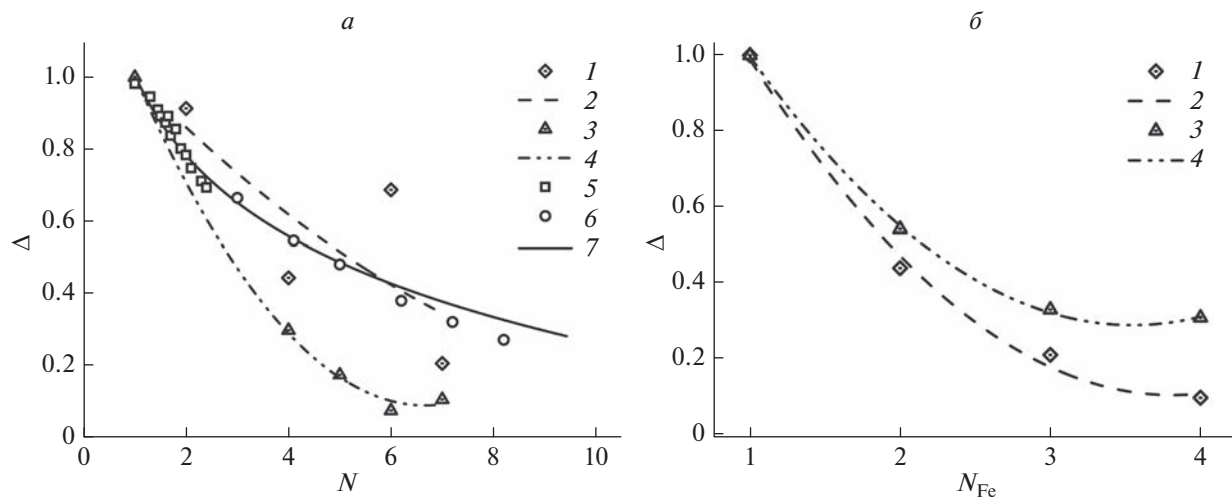


Рис. 3. Значения параметра анизотропии Δ в зависимости от толщины пленки, полученные для различных систем и их аппроксимация: Fe/Pt(100)/Fe (1, 2), Fe/Pt(110)/Fe (3, 4), значения $\Delta = 1 - \frac{T_c(N)}{T_c(\infty)}$ (5–7), при полученных из эксперимента $T_c(N)$ для Ni/Cu(100) и Co/Cu(100) [18] (a); Fe/Cr(100)/Fe (1–2); Fe/Cr(110)/Fe (3–4) (б).

Выведем параметр анизотропии из полученных уравнений:

$$\Delta_{\parallel} = 1 - \frac{E_z}{E_x} = \frac{E_x - E_z}{E_x}. \quad (5)$$

Аналогичным образом из (2) получаем

$$\Delta_{\perp} = 1 - \frac{E_x}{E_z} = \frac{E_z - E_x}{E_z}, \quad (6)$$

где $\Delta_{\parallel}$ соответствует гамильтониану типа легкая плоскость, а $\Delta_{\perp}$ гамильтониану типа легкая ось. Используя полученные ранее E_z и E_x , соответствующие значения полной энергии при направлении магнитных моментов атомов железа параллельно и перпендикулярно плоскости поверхности, получим Δ . Так как параметр анизотропии должен находиться в интервале от 0 до 1, а $E_{\text{МА}}$ максимальна для монослойной пленки, нормируем данные на значения Δ для монослоя. Результаты расчетов и их аппроксимация представлены на рис. 3. Можно заметить, что аппроксимация параметра анизотропии параболой имеет схожее поведение с результатами, полученными при аппроксимации [14] экспериментальных значений, для систем Ni/Cu(100) и Co/Cu(100) [18].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследовано явление магнитной анизотропии в пленках железа, разделенных прослойкой хрома и платины в зависимости от ориентации поверхностной грани и толщины слоев. Результаты показали, что перпендикулярная анизотропия для монослойных пленок железа с прослойкой из платины возникает только для грани (100) для всех толщин пластины Pt и для грани (110) для толщины пластины Pt в 5 монослоев. Для грани (111) при всех толщинах немагнитной прослойки более энергетически выгодна анизотропия типа легкая плоскость со значениями $E_{\text{МА}} = E_{\perp} - E_{\parallel} \approx 0.5\text{--}1.0$ мЭВ.

Для пленок толщиной в 1–3 моноатомных слоя было исследовано значение $E_{\text{МА}}$ при изменении угла направления вектора магнитного момента, от $\Theta = 0^\circ$ до $\Theta = 90^\circ$. Прослеживается плавное изменение значения $E_{\text{МА}}$ от значения угла. Показано, что для более тонких пленок, значение $E_{\text{МА}}$ выше, чем для пленок, состоящих из большего количества слоев. Для системы Fe/Cr/Fe перпендикулярная анизотропия при толщине прослойки в 3 моноатомных слоя возникает для всех ориентаций поверхностной грани. С увеличением толщины пленки абсолютное значение $E_{\text{МА}}$ уменьшается, а для прослойки из платины также меняется тип преобладающей анизотропии. С увеличением толщины пленки железа в системе Fe/Pt/Fe для всех ориентаций наблюдается преобладание

анизотропии типа легкая плоскость. И значение $E_{\text{МА}}$ и намагниченности для системы с прослойкой из платины значительно выше, чем у хрома.

Были рассчитаны значения параметра анизотропии Δ , аппроксимация которых имеет схожее с параболой поведение. Полученные нами результаты могут быть применены при численном моделировании методами Монте-Карло [1, 14] неравновесного поведения магнитных структур и расчетах коэффициента ГМС.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Минобрнауки РФ (соглашение 0741-2020-0002). Были использованы вычислительные ресурсы Центра совместного пользования ДВО РАН (Хабаровск).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Дроворуб Е.В., Прудников В.В., Прудников П.В. // Изв. РАН. Сер. физ. 2022. Т. 86. № 2. С. 158; Drovorub E.V., Prudnikov V.V., Prudnikov P.V. // Bull. Russ. Acad. Sci. Ser. Phys. 2022. V. 86. No. 2. P. 109.
2. Ennen I., Kappe D., Rempel T. et al. // Sensors. 2016. V. 16. P. 904.
3. Freitas P.P., Ferreira R., Cardoso S. et al. // J. Phys. Cond. Matter. 2007. V. 19. Art. No. 165221.
4. Николадзе Г.М., Матюнин А.В., Поляков П.А. // Изв. РАН. Сер. физ. 2021. Т. 85. № 11. С. 1559; Nikoladze G.V., Matyunin A.V., Polyakov P.A. // Bull. Russ. Acad. Sci. Ser. Phys. 2021. V. 85. No. 11. P. 1222.
5. Johnson M.T., Bloemen P.J., den Broeder F.J.A. et al. // Rep. Prog. Phys. 1996. V. 59. No. 11. P. 1409.
6. Vaz C.A.F., Bland J.A.C., Lauhoff G. // Rep. Prog. Phys. 2008. V. 71. P. 51.
7. Mankovsky S., Ebert H. // Electron. Struct. 2022. V. 4. Art. No. 034004.
8. Gradmann U. // J. Magn. Magn. Mater. 1986. V. 54. P. 733.
9. den Broeder F.J.A., Hoving W., Bloemen P.J.H. // J. Magn. Magn. Mater. 1991. V. 93. P. 562.
10. Fritzsche H., Gradmann U. // MRS Proc. 1993. V. 313. P. 671.
11. Elmers H.J., Gradmann U. // Appl. Phys. A. 1990. V. 51. P. 255.
12. Etz C., Zabloudil J., Weinberger P., Vedmedenko E.Y. // Phys. Rev. B. 2008. V. 77. Art. No. 184425.
13. Tsujikawa M., Hosokawa A., Oda T. // Phys. Rev. B. 2008. V. 77. Art. No. 054413.
14. Prudnikov P.V., Prudnikov V.V., Mamonova M.V. et al. // J. Magn. Magn. Mater. 2019. V. 470. P. 201.
15. Kresse P. G., Furthmüller J. // Phys. Rev. B. 1996. V. 54. Art. No. 11169.
16. Мамонова М.В., Макеев М.Ю., Калинин Д.С., Зенова А.А. // ФТТ. 2021. Т. 63. № 11. С. 1787.
17. Bornemann S., Sipr O., Mankovsky S. et al. // Phys. Rev. B. 2012. V. 86. Art. No. 104436.
18. Huang F., Kief M.T., Mankye G.J., Willis R.F. // Phys. Rev. B. 1994. V. 49. Art. No. 3962.

Investigation of magnetic anisotropy effects in trilayer metal nanostructures based on iron film

М. Yu. Makeev^a, М. V. Mamonova^a, *

^a *Dostoevsky Omsk State University, Omsk, 644077 Russia*

^{*}*e-mail: mamonovamv@omsu.ru*

Within the framework of the spin density functional theory, the energy and magnetic properties of Fe/Cr/Fe, Fe/Pt/Fe systems were studied using the VASP software package. Calculations of the dependence of the total energy on the angle of direction of the magnetic moment of atoms showed the advantage of perpendicular anisotropy for Fe/Cr/Fe for all considered Fe film thicknesses and surface orientations. For Fe/Pt/Fe, a more complex dependence is observed, but with an increase in the iron film thickness, easy-plane anisotropy prevails.

УДК 537.9:53.03

ОТРИЦАТЕЛЬНАЯ АНИЗОТРОПИЯ В ПЛЕНКАХ Ni–Fe

© 2023 г. П. А. Савин^{1, *}, О. А. Аданаква¹, В. Н. Лепаловский¹,
Е. В. Кудюков¹, В. О. Васьковский^{1, 2}

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
“Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина”, Екатеринбург, Россия

²Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
“Институт физики металлов имени М.Н. Михеева” Уральского отделения Российской академии наук,
Екатеринбург, Россия

*E-mail: Peter.Savin@urfu.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Получены пленки FeNi, обладающие эффектом “отрицательной анизотропии”, заключающемся в формировании наведенной анизотропии перпендикулярно полю осаждения. Протестирована ранее предложенная модель эффекта, основанная на отрицательной магнитострикции и неоднородных напряжениях. Влияние дополнительных напряжений анализировалось по изменяющейся форме $R-H$ кривых. Изменения анизотропии согласуются с моделью.

DOI: 10.31857/S0367676522700880, EDN: NLMHKW

Железо-никелевые пленки являются предметом активных научных исследований с 50-х гг. прошлого века и по настоящее время. Это связано с широким спектром реализуемых свойств и возможностями технического применения, например, в области записи и обработки информации, спинтронике, магниторезистивных датчиках [1, 2]. Автор [3] показал наличие в некоторых пленках FeNi небольших областей с “отрицательной анизотропией”. Название эффекта связано с возможностью описания одноосной анизотропии плотностью свободной энергии $E_k = K_{\pm} \sin^2 \varphi$, где φ — угол между намагниченностью $\vec{M}$ и полем осаждения $\vec{H}_{dep}$. Константа анизотропии $K_{\pm}$ может быть выбрана положительной или отрицательной в зависимости от направления наведенной анизотропии: вдоль поля $\vec{H}_{dep}$ или поперек. Для формирования оси легкого намагничивания (ОЛН), при осаждении пленки обычно прикладывают магнитное поле осаждения $\vec{H}_{dep}$ в плоскости подложки и ОЛН формируется вдоль этого направления [4].

Авторы [5] предложили модель для объяснения эффекта отрицательной анизотропии, суть которой состоит в совместном действии двух факторов: анизотропного распределения (миграции) дефектов и отрицательной магнитострикции с неоднородными напряжениями.

Механизм анизотропии поясняется схемой (рис. 1). Осажденную пленку можно представить в виде набора отдельных кристаллитов (квадратики) и дефектов (точки). При повышенной температуре (сопутствующей процессу напыления), беспорядочно расположенные дефекты могут мигрировать к границам зерен. Наличие технологического поля $\vec{H}_{dep}$, провоцирует неравномерное распределение дефектов в межзеренном пространстве, уменьшая магнитостатическую энергию [6]. В результате вдоль направления поля осаждения образуются “цепочки кристаллитов”, разделенные скоплениями дефектов.

Теперь, для создания оси легкого намагничивания, перпендикулярной полю осаждения, необходимо приложить растягивающее напряжение вдоль “цепочек”, так как состав $\text{Fe}_{10}\text{Ni}_{90}$ обладает отрицательной магнитострикцией [7]. Это обеспечивается следующим механизмом. Коэффициент теплового расширения металлической пленки намного больше, чем у стеклянной подложки. В результате, по завершении процесса осаждения, пленка испытывает растягивающие напряжения. Эти напряжения действуют как вдоль, так и поперек “цепочек кристаллитов”. Однако анизотропное распределение дефектов демпфирует напряжения в поперечном направлении, в результате чего продольное натяжение “цепочек кристаллитов” оказывается доминирующим.

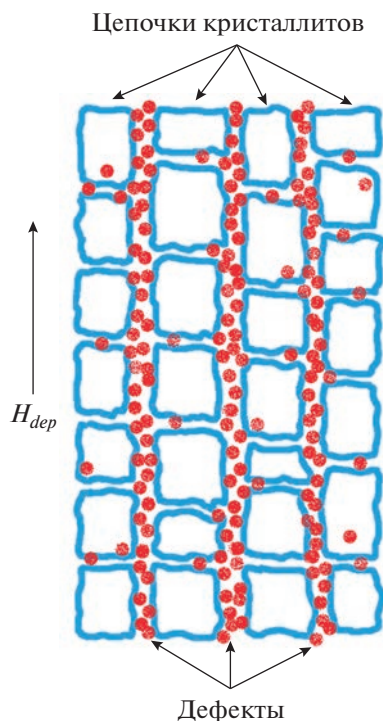


Рис. 1. Схема формирования "цепочек кристаллитов" вследствие анизотропного распределения дефектов.

Поскольку, в соответствии с моделью, одним из факторов формирования "отрицательной анизотропии" являются напряжения, нас интересовала зависимость анизотропии от дополнительных напряжений. Мы исходили из предположения, что возникающая анизотропия состоит из совместного действия двух механизмов, каждый из которых порождает взаимно перпендикулярные направления анизотропии. Первый механизм обусловлен анизотропией формы "цепочек кристаллитов", а второй обеспечивается механическими напряжениями и магнитострикцией. Следовательно, соотношение вкладов от этих двух механизмов, может изменить как величину, так и знак константы анизотропии.

Образцы изготавливались по технологии магнетронного напыления. Пленки осаждались на квадратные, 22×22 мм, стеклянные подложки, помещенные на вращающийся со скоростью 32 оборота в минуту подложкодержатель. Пленки осаждались в присутствии параллельного подложке магнитного поля, напряженностью 250 Э, которое вращалось вместе с подложкодержателем. Давление рабочего газа (аргона) составляло 0.2 Па. В качестве мишени использовался диск из сплава $\text{Fe}_{10}\text{Ni}_{90}$. Скорость осаждения пленки составляла $0.12 \text{ нм} \cdot \text{с}^{-1}$, а толщина пленки 40 нм.

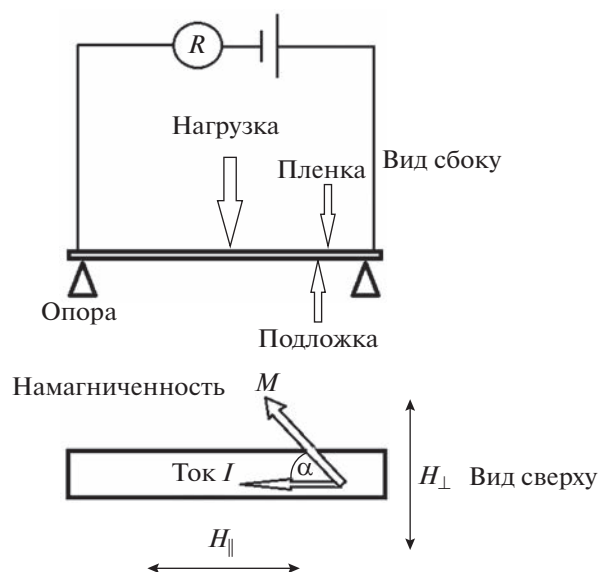


Рис. 2. Схема измерения $R-H$ кривых на полосовых образцах под действием деформирующей нагрузки.

Для наблюдения за изменением анизотропии за счет упругого напряжения, были измерены $R-H$ кривые (зависимость электрического сопротивления от магнитного поля) на образцах без деформирующей нагрузки или с деформирующей нагрузкой. Для этого использовали способ, представленный на рис. 2. Образцы имели форму полос 10×2 мм и вырезались как вдоль, так и поперек направления поля осаждения. $R-H$ кривые были измерены при приложении поля вдоль полосы ($\vec{H}_{||}$) и поперек полосы ($\vec{H}_{\perp}$). Продольные сжимающие напряжения обеспечивались деформирующей нагрузкой. Поскольку сопротивление R образца зависит от угла α между током $\vec{I}$ и намагниченностью $\vec{M}$ (эффект анизотропии магнетосопротивления), $R-H$ кривые позволяют определить направление оси легкого намагничивания. Для этого надо иметь в виду, что низкое значение сопротивления R соответствует перпендикулярной ориентации намагниченности $\vec{M}$ к полосе, а высокое значение R — параллельной.

Если предположения модели верны, то приложение дополнительных напряжений вдоль или поперек "цепочек кристаллитов" должно влиять на анизотропию. Когда, например, вдоль "цепочек кристаллитов" прикладывается сжимающее напряжение — исходное растягивающее напряжение компенсируется. Можно предполагать, что механизм анизотропии, связанный с магнитострикцией, таким образом можно "выключить". Тогда будет преобладать вклад от анизотропии формы "цепочек кристаллитов" и, следовательно, ось легкого намагничивания должна повернуться на 90 градусов.

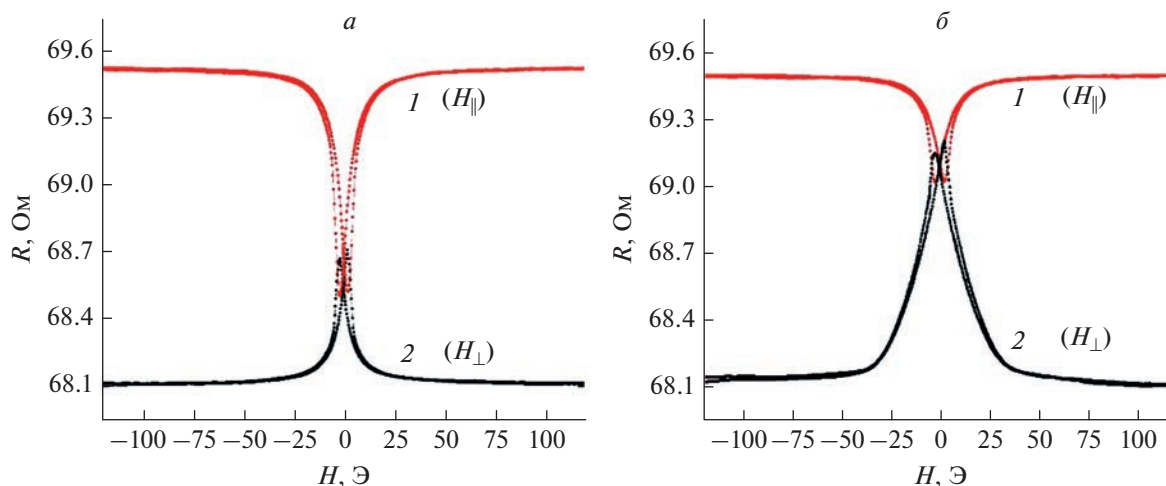


Рис. 3. R – H кривые для полосового образца, вырезанного вдоль действия поля осаждения $\vec{H}_{dep}$ (“цепочки кристаллитов” вдоль образца): без деформирующей нагрузки (а), с деформирующей нагрузкой (б).

Описанная ситуация соответствует рис. 3, на котором показаны R – H кривые для полосового образца, вырезанного из исходной $\text{Fe}_{10}\text{Ni}_{90}$ пленки, вдоль направления действия технологического поля $\vec{H}_{dep}$. Согласно модели, это соответствует ориентации “цепочек кристаллитов” вдоль полосы.

Из рис. 3а (без деформирующей нагрузки), мы можем видеть, что приложение поля вдоль полосы ($\vec{H}_{\parallel}$, красная кривая – 1) существенно изменяет (увеличивает) сопротивление R , в то время как поперечное приложение поля ($\vec{H}_{\perp}$, черная кривая – 2) изменяет сопротивление незначительно. Другими словами, увеличение поля $\vec{H}_{\parallel}$ вдоль полосы, поворачивает намагниченность от исходно (при $\vec{H}_{\parallel} = 0$ Э) перпендикулярной к полоске ориентации, к продольной ориентации (с увеличением поля $\vec{H}_{\parallel}$ до насыщения), в то время как приложение поля $\vec{H}_{\perp}$, поперек полосы, вращает намагниченность незначительно. Из этого можно заключить, что ОЛН в образце, ориентирована преимущественно поперек полосы.

Из рис. 3б (с деформирующей нагрузкой), мы можем видеть, что приложение сжимающего напряжения вдоль полосы “переворачивает” ситуацию: теперь приложение поля вдоль полосы ($\vec{H}_{\parallel}$, красная кривая – 1) изменяет сопротивление незначительно, в то время как поперечное приложение поля ($\vec{H}_{\perp}$, черная кривая – 2) изменяет (уменьшает) сопротивление существенно. Из этого мы можем заключить о переориентации ОЛН, которая теперь ориентирована преимущественно вдоль полосы.

Рисунок 4 соответствует ситуации, когда полоска вырезана из исходной пленки $\text{Fe}_{10}\text{Ni}_{90}$ поперек направления действия технологического поля, т.е., “кристаллические цепочки” ориентированы поперек полосы. Анализируя рис. 4а, можно сделать вывод, что ось легкого намагничивания ориентирована вдоль полосы. Рисунок 4б соответствует приложению поперечного сжимающего напряжения к “цепочкам кристаллитов”. Как и следовало ожидать, приложенное сжимающее напряжение не только не меняет ориентацию оси легкого намагничивания, но и приводит к примерно двукратному увеличению поля анизотропии. Действительно, для поворота намагниченности поперек полосы необходимо поле $\vec{H}_{\perp} \approx 25$ Э (рис. 4а, черная кривая – 2), а при приложении деформирующей нагрузки, требуется поле $\vec{H}_{\perp} \approx 50$ Э (рис. 4б, черная кривая – 2). Мы полагаем, что это результат совместного действия напряжений, растягивающих “цепочки кристаллитов” продольно (согласно модели), и внешних напряжений, сжимающих их в поперечном направлении.

Следует отметить, что не все исследованные нами пленки состава $\text{Fe}_{10}\text{Ni}_{90}$ обнаруживали эффект “отрицательной анизотропии”. На пленке толщиной 70 нм, эффект не был обнаружен. Вероятно, причина может быть в следующем. Как было отмечено выше, направление оси легкого намагничивания определяется конкуренцией двух механизмов, порождающих взаимно перпендикулярные направления ОЛН. Свойства тонких магнитных пленок зависят от толщины. Известно, например, что распределение кристаллитов по размерам может зависеть от толщины пленки [8]. Вполне возможно, что вклад этих механизмов может иметь различную зависимость от толщины пленки. Реше-

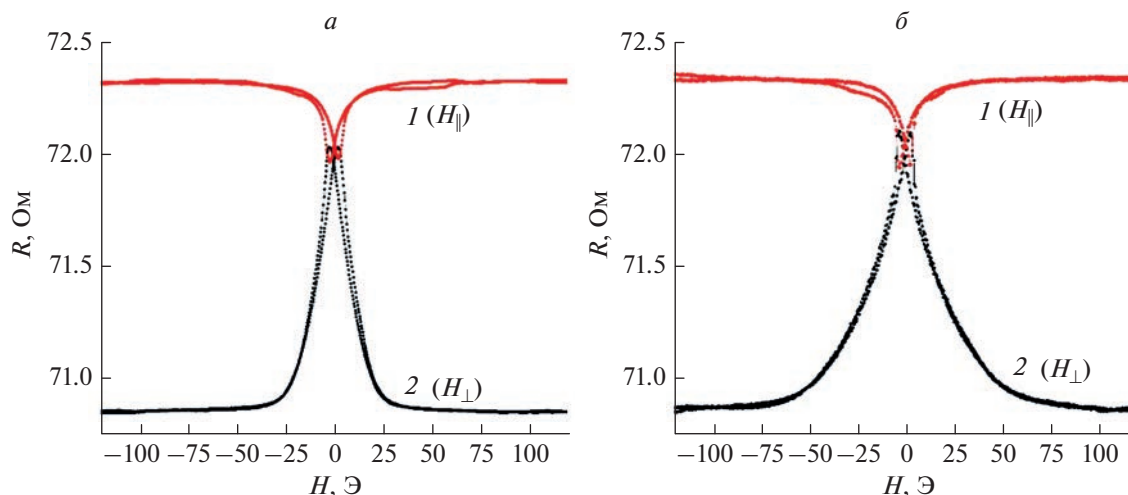


Рис. 4. R – H кривые для полосового образца, вырезанного поперек действия поля осаждения $\vec{H}_{dep}$ (“цепочки кристаллитов” поперек образца): без деформирующей нагрузки (а), с деформирующей нагрузкой (б).

ние этого вопроса требует дополнительных исследований. Вопрос о том, какие именно дефекты участвуют в формировании анизотропии, остается за рамками статьи. Отметим лишь, что пленки, полученные по технологии ионно-плазменного напыления, могут иметь значительное количество дефектов [9].

Модель может быть использована для изучения механизмов формирования наведенной магнитной анизотропии, а также для управления ею в изделиях планарной технологии [2], ферромагнитных микропроводах со стеклянным покрытием [10].

Исследование выполнено при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (Программа развития Уральского федерального университета в рамках Программы “Приоритет-2030”).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Blois M.S. // J. Appl. Phys. 1955. V. 26. P. 975.
2. Jogschies L., Klaas D., Kruppe R. et al. // Sensors. 2015. V. 15. Art. No. 28665.
3. Smith D.O. // Appl. Phys. Lett. 1963. V. 2. P. 191.
4. Soohoo R.F. // Czech. J. Phys. 1971. V. 21. P. 494.
5. Savin P.A., Adanakova O.A., Lepalovskij V.N. et al. // J. Phys. Conf. Ser. 2019. V. 1389. Art. No. 012122.
6. Лесник А.Г. Индуцированная магнитная анизотропия. Киев: Наукова думка, 1976. 160 с.
7. Miyazaki T., Oomori T., Sato F. et al. // J. Magn. Mater. 1994. V. 129. Art. No. L135.
8. Савин П.А., Васильковский В.О., Кандаурова Г.С., Лепаловский В.Н. // Микроэлектроника. 1991. Т. 20. С. 407.
9. Maissel L.I., Glang R. Handbook of thin film technology. N.Y.: McGraw Hill, 1970.
10. Zhukov A., González J., Blanco M. et al. // J. Mater. Res. 2000. V. 15. P. 2107.

Negative anisotropy in Ni–Fe films

P. A. Savin^{a, *}, O. A. Adanakova^a, V. N. Lepalovskij^a, E. V. Kudyukov^a, V. O. Vas'kovskiy^{a, b}

^a Ural Federal University, Yekaterinburg, 620002 Russia

^b Mikheev Institute of Metal Physics, Ural Branch of the Russian Academy of Sciences, Yekaterinburg, 620108 Russia

*e-mail: Peter.Savin@urfu.ru

Fe–Ni films were obtained in which the effect of “negative anisotropy” is observed. This effect consists in the formation of easy magnetization axis perpendicular to the deposition field. A model based on negative magnetostriction, and inhomogeneous stresses is tested. The model parameters were varied by applying additional stresses to the film. The effect of additional stresses is analyzed by changing the shape of the R – H curves. It is shown that changes in anisotropy occur in accordance with the model.

УДК 537.624

ПЕРЕМАГНИЧИВАНИЕ ПРОДОЛЬНО НАМАГНИЧЕННОЙ ПЛЕНКИ С КУБИЧЕСКОЙ АНИЗОТРОПИЕЙ МАГНИТНЫМИ ИМУЛЬСАМИ

© 2023 г. В. Н. Шапоров¹, *, Л. Н. Котов¹, В. С. Власов¹

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования “Сыктывкарский государственный университет”, Сыктывкар, Россия

*E-mail: shaporov@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Построены диаграммы перемагничивания для продольно подмагниченной пленки с параметрами железо-иттриевого граната с примесью кобальта. Пленка возбуждается наносекундными импульсами магнитного поля с амплитудой до 1000 Э. Показано, что при намагничивающем поле, меньшем поля анизотропии, под действием поля импульсов, осуществляются переходы между стабильными состояниями, характеризующиеся минимумами энергии.

DOI: 10.31857/S0367676522700892, EDN: NLNMWC

ВВЕДЕНИЕ

Исследования магнитной динамики ферромагнитных пленок в настоящее время активно ведутся в связи с их применением в современной магнитооптике, микросхемах магниторезистивной памяти, спинтронике, физике магнитных явлений в наноструктурах. Перемагничивание ферромагнитных наночастиц импульсами поля происходит в течение времени порядка нано- и пикосекунд, что дает возможности применения этого эффекта в различных быстродействующих переключающих и запоминающих элементах на основе переориентации вектора намагниченности. Исследования по перемагничиванию наночастиц ведутся также в области сверхбыстрой магнитооптики [1–3]. Направление вектора намагниченности в однодоменном образце определяется направлением внешнего постоянного поля, размагничивающими полями, полями анизотропии формы и анизотропии решетки. В пленках, в силу большого размагничивающего поля, намагниченность стремится ориентироваться вдоль плоскости пленки. Для монодоменного магнетика перемагничивание определяется анизотропией его формы [4]. В случае монокристаллической пленки влияние на положение вектора намагниченности будет также оказывать магнитная кристаллическая анизотропия [5]. В настоящей работе с помощью численных методов исследовалась магнитная динамика однородно намагниченного вдоль плоскости монокристаллического образца пленки с материальными параметрами железо-иттриевого граната с примесью кобальта состава

$\text{Y}_3\text{Fe}_{4.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}_{12}$ под действием импульсов магнитного поля.

ГЕОМЕТРИЯ ЗАДАЧИ, УРАВНЕНИЯ ДВИЖЕНИЯ

Магнитная пленка, полученная из кристалла состава $\text{Y}_3\text{Fe}_{4.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}_{12}$, будет иметь кубическую решетку с тремя осями легкого намагничивания (ОЛН), которые в выбранной модели направлены вдоль осей декартовой системы координат, а ось Oz перпендикулярна плоскости пленки (рис. 1а). Подмагничивающее поле $\vec{H}_0$ и возбуждающее поле $\vec{h}$ импульса приложены в плоскости пленки. Форма импульса показана на рис. 1б. Задача рассматривалась для однородно намагниченной пленки в безобменном приближении, поэтому расчет проводился для единичного вектора магнитного момента, который, в силу однородного движения магнитных моментов, совпадал с вектором намагниченности всей пленки.

Динамика единичного вектора намагниченности $\vec{m}$ с координатами (m_x, m_y, m_z) в эффективном поле $\vec{H}_e$ была рассчитана с помощью уравнения Ландау–Лифшица с учетом релаксационного члена в форме Гильберта [6–8]

$$\frac{\partial \vec{m}}{\partial t} = -\gamma [\vec{m} \times \vec{H}_e] + \alpha \left[\vec{m} \times \frac{\partial \vec{m}}{\partial t} \right]. \quad (1)$$

Эффективное поле $\vec{H}_e$ находилось дифференцированием плотности полной энергии E по еди-

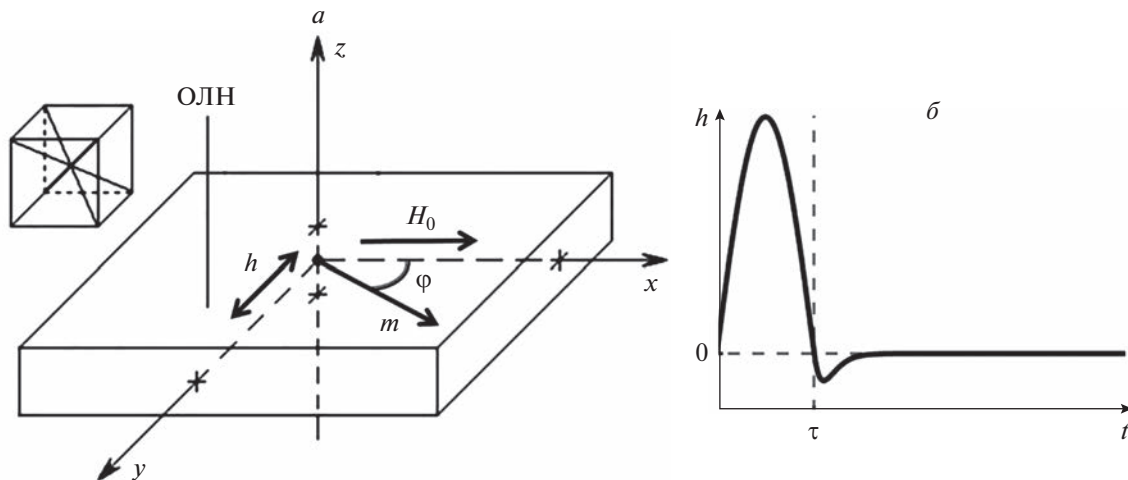


Рис. 1. Геометрия полей, осей координат и кристаллографических осей (а); форма магнитного поля возбуждающего импульса (б).

ничному вектору намагниченности. Энергия была выбрана в виде суммы энергий магнитных моментов во внешних полях: энергии размагничивающего диполь–дипольного взаимодействия и энергии магнитной кристаллической анизотропии решетки. Плотность полной энергии магнитного поля для выбранной модели имеет вид

$$E = -M_s H_0 m_x - M_s h_y m_y + 2\pi M_s^2 m_z^2 + K_1 (m_x^2 m_y^2 + m_x^2 m_z^2 + m_y^2 m_z^2) + K_2 (m_x^2 m_y^2 m_z^2), \quad (2)$$

где K_1 и K_2 – первая и вторая константы магнитной анизотропии, m_x , m_y , m_z – проекции единичного вектора намагниченности, M_s – намагниченность насыщения, H_0 – амплитуда подмагничивающего поля.

В выражении (2) энергия анизотропии кубического магнетика была выбрана в соответствии с [6, 7] в виде

$$E_a = K_1 (m_x^2 m_y^2 + m_x^2 m_z^2 + m_y^2 m_z^2) + K_2 (m_x^2 m_y^2 m_z^2). \quad (3)$$

Энергия диполь–дипольного взаимодействия для заданной геометрии будет иметь вид

$$E_d = 2\pi M_s^2 m_z^2. \quad (4)$$

Эффективное поле $\vec{H}_e$ является суммой внешних постоянного подмагничивающего $\vec{H}_0$ и переменного $\vec{h}$ полей, размагничивающего поля $\vec{H}_d$ и поля магнитной анизотропии кубического кристалла $\vec{H}_a$

$$\vec{H}_e = \vec{H}_0 + \vec{h} + \vec{H}_d + \vec{H}_a. \quad (5)$$

Размагничивающее поле для указанной на рис. 1 ориентации образца в виде бесконечно тонкой пластины равно

$$\vec{H}_d = -\frac{1}{M_s} \sum_{i=(x,y,z)} \frac{\partial E_d}{\partial m_i} \vec{e}_i = -4\pi M_s m_z \vec{e}_z, \quad (6)$$

где $\vec{e}_z$ – единичный вектор, направленный вдоль оси Z. Поле анизотропии определяется выражением

$$\vec{H}_a = -\frac{1}{M_s} \sum_{i=(x,y,z)} \frac{\partial E_a}{\partial m_i} \vec{e}_i, \quad (7)$$

где E_a – энергия анизотропии [6]. Компоненты поля анизотропии, при подстановке (3) в (7), запишутся в следующем виде

$$H_{ax} = -\frac{1}{M_s} [2m_x (K_1 (m_y^2 + m_z^2) + K_2 m_y^2 m_z^2)], \quad (8)$$

а H_{ay} , H_{az} получаются при циклической перестановке индексов x, y, z. Линейно-поляризованное магнитное поле импульса, действующее в плоскости пленки вдоль оси Oy, выбиралось в виде одиночных импульсов поля $\vec{h}$, компоненты (h_x , h_y , h_z) которого описываются выражениями

$$h_y = h = h_0 \sin\left(\frac{\pi}{\tau}\right) e^{-\gamma\left(\frac{t}{\tau}-1\right)}, \quad h_x = h_z = 0, \quad (9)$$

где h_0 – амплитуда импульса, t – время, τ – длительность импульса, $\gamma \approx 10$ – коэффициент, влияющий на форму и длительность импульса. Подставляя выражение для размагничивающего поля (6), компоненты поля анизотропии, определяемые выражением (8), компоненты поля импульса $\vec{h}$, определяемые выражениями (9), в выражение (5),

получим выражения для компонент эффективного поля

$$\begin{aligned} H_{ex} &= H_0 - \frac{1}{M_s} \left[2m_x (K_1 (m_y^2 + m_z^2) + K_2 m_y^2 m_z^2) \right], \\ H_{ey} &= h - \frac{1}{M_s} \left[2m_y (K_1 (m_z^2 + m_x^2) + K_2 m_z^2 m_x^2) \right], \\ H_{ez} &= -4\pi M_s m_z - \\ &\quad - \frac{1}{M_s} \left[2m_z (K_1 (m_x^2 + m_y^2) + K_2 m_x^2 m_y^2) \right]. \end{aligned} \quad (10)$$

Векторное уравнение (1) в координатном выражении приводится к виду

$$\begin{aligned} \frac{\partial m_x}{\partial t} &= -\frac{\gamma}{1 + \alpha^2} \times \\ &\times \left[(m_y + \alpha m_x m_z) H_{ez} - (m_z - \alpha m_y m_x) H_{ey} - \right. \\ &\quad \left. - \alpha (m_y^2 + m_z^2) H_{ex} \right], \\ \frac{\partial m_y}{\partial t} &= -\frac{\gamma}{1 + \alpha^2} \times \\ &\times \left[(m_z + \alpha m_y m_x) H_{ex} - (m_x - \alpha m_z m_y) H_{ez} - \right. \\ &\quad \left. - \alpha (m_z^2 + m_x^2) H_{ey} \right], \\ \frac{\partial m_z}{\partial t} &= -\frac{\gamma}{1 + \alpha^2} \times \\ &\times \left[(m_x + \alpha m_z m_y) H_{ey} - (m_y - \alpha m_x m_z) H_{ex} - \right. \\ &\quad \left. - \alpha (m_x^2 + m_y^2) H_{ez} \right], \end{aligned} \quad (11)$$

где H_{ex}, H_{ey}, H_{ez} определяются выражениями (10).

ПАРАМЕТРЫ И МАГНИТНАЯ ЭНЕРГИЯ ПЛЕНКИ

Значения материальных параметров исследуемой пленки брались близкими к значениям кристалла железо-кобальто-иттриевого граната состава $Y_3Fe_{4.97}Co_{0.03}O_{12}$, так как этот материал характеризуется малыми значениями намагниченности насыщения $M_s = 139$ Э и большими, по сравнению с чистым железо-иттриевым гранатом, константами анизотропии $K_1 = 14630$ эрг · см⁻³, $K_2 = -8780$ эрг · см⁻³ (значения констант даны при температуре 20°C) [9]. Поскольку данный материал имеет кубическую решетку кристалла, для которого характерны шесть направлений легкого намагничивания, и при выбранной ориентации системы координат, четыре из этих направлений будут лежать в плоскости пленки. Распределение плотности энергии магнитного поля, в соответствии с выражением (2), в зависимости от направления вектора намагниченности в пространстве, вблизи плоскости и в плоскости пленки показано на рис. 2. Поскольку энергия размагничивания пленки для данного материала на порядок больше

энергии кристаллической анизотропии, то кристаллическая анизотропия будет оказывать влияние на направление вектора намагниченности только в плоскости пленки при условии, что амплитуда импульса поля, действующего в плоскости, будет меньше магнитного поля, создаваемого кристаллической анизотропией. При $H_0 = 0$ магнитный момент может быть направлен вдоль любой из четырех полуосей, для которых характерен минимум энергии, обозначенных буквами А, В, С, D (рис. 2б). Перпендикулярно плоскости пленки минимумы энергии кристаллической анизотропии перекрываются существенно большей энергией размагничивающего поля, поэтому вдоль этих направлений вектор намагниченности ориентироваться не будет. Если подмагничивающее поле $\vec{H}_0$ меньше поля кристаллической магнитной анизотропии и направлено вдоль одной из осей легкого намагничивания, совпадающей с осью Ox , то потенциальные барьеры между этим направлением и осью Oy уменьшаются (рис. 2г). При этом, если импульс направлен в положительном направлении оси Oy , то вектор намагниченности будет ориентироваться преимущественно в направлении А или В, а если в отрицательном, то в направлении А или С. При этом направления В и С, ориентированные вдоль оси Oy и соответствующие минимумам энергии, отклонятся на некоторый угол в направлении приложенного внешнего поля.

ОПИСАНИЕ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Система (11) с учетом (10) решалась относительно компонент вектора намагниченности m_x, m_y, m_z с использованием метода Дормана–Принса 8-го порядка с использованием контроля ошибки вычислений. При определенных соотношениях амплитуды и длительности импульса происходит перемагничивание пленки, когда вектор намагниченности переходит из одного пространственного минимума энергии в другой. На рис. 3 показаны результаты вычислений в виде диаграмм перемагничивания пленки, на которой показаны области с разными значениями угла φ , на который поворачивается вектор намагниченности $\vec{M}$ после действия поля импульса и процессов релаксации. Зависимость конечного угла φ от амплитуды импульса поля h_0 и длительности τ , рассчитанная для подмагничивающего поля $H_0 = 15$ Э, показана на рис. 3а. Область с $\varphi = 0^\circ$ соответствует первоначальному направлению вектора намагниченности, параллельного оси Ox . Большую площадь этой диаграммы занимают области с поворотом вектора намагниченности на угол $\varphi = 85^\circ$, соответствующего одному из минимумов энергии. Это направле-

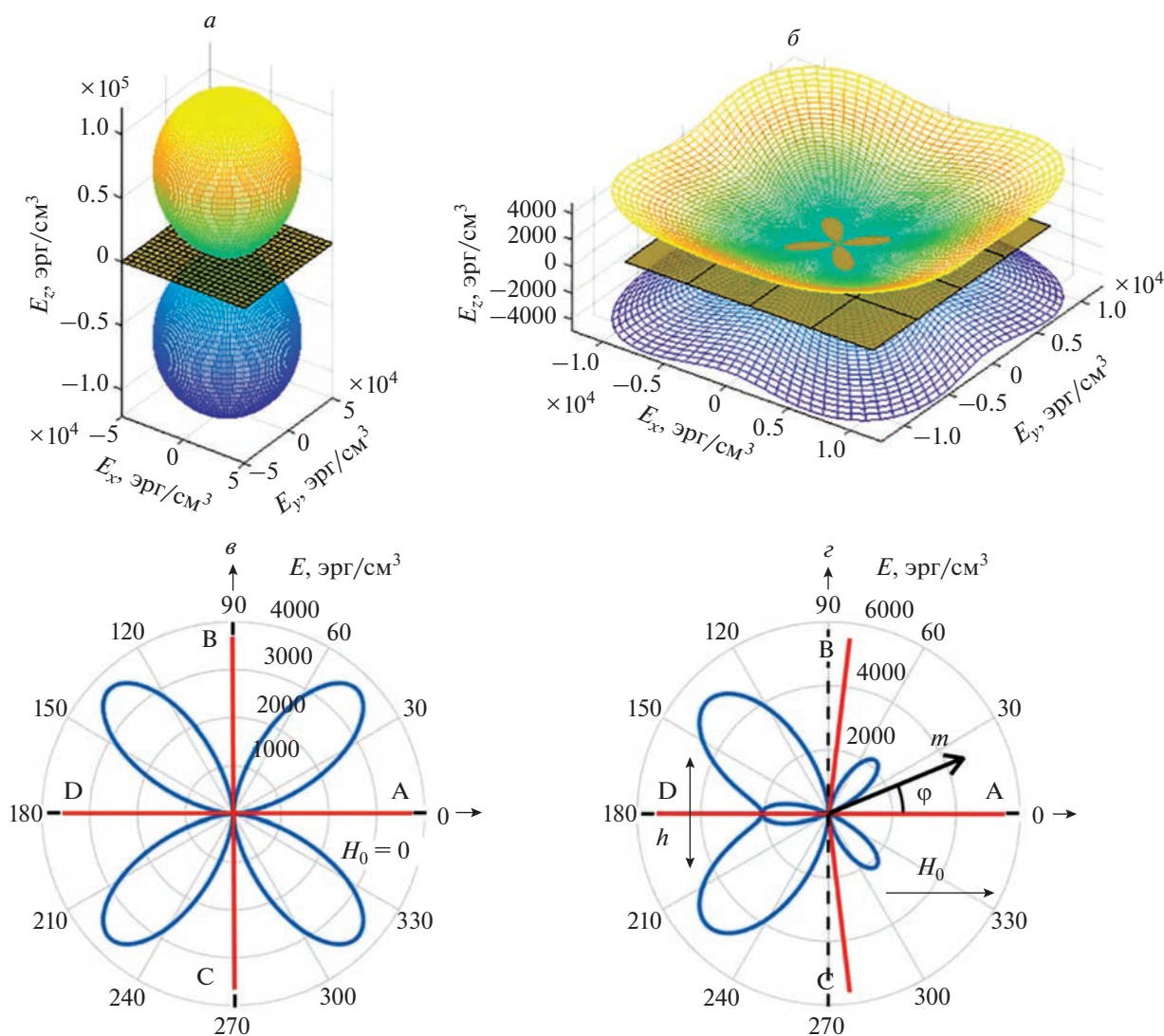


Рис. 2. Распределение плотности энергии магнитной анизотропии пленки состава $\text{Y}_3\text{Fe}_{4.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}_{12}$ от направления в пространстве при отсутствии подмагничивающего поля: вдали от плоскости пленки (а), вблизи плоскости пленки (б), в плоскости пленки (в); в плоскости пленки при подмагничивающем поле $H_0 = 15$ Э, направленном вдоль оси Ox (г).

ние является наиболее устойчивым при больших длительностях импульса τ , поскольку с ростом τ растет время, в течение которого поле импульса вносит в этом направлении вклад в эффективное магнитное поле, вдоль которого стремится ориентироваться намагниченность пленки. Плотность распределения энергии магнитного поля, и соответственно, величина энергетических барьеров, зависящая от изменяющегося результирующего эффективного магнитного поля, будут динамически меняться во время всего процесса колебаний сложным образом. Во время движения вектор намагниченности стремится выстроиться вдоль эффективного поля, несколько запаздывая, так как он обладает некоторой инерционностью. При угловом движении вектора намагниченности, при

переходе между направлениями осей легкого намагничивания, пока кинетическая энергия вектора намагниченности выше энергии барьеров магнитной кристаллической анизотропии, он их преодолевает. После окончания действия импульса, в процессе диссипативных потерь, когда кинетическая энергия вектора намагниченности становится ниже энергии этих барьеров, его движение затухает и он останавливается в одном из четырех направлений, соответствующих минимумам энергии. В результате траектория вектора намагниченности становится очень сложной. Перемагничивание пленки не происходит, когда траектория магнитных моментов такова, что не хватает кинетической энергии перейти через ближайшие к начальному направлению энергетиче-

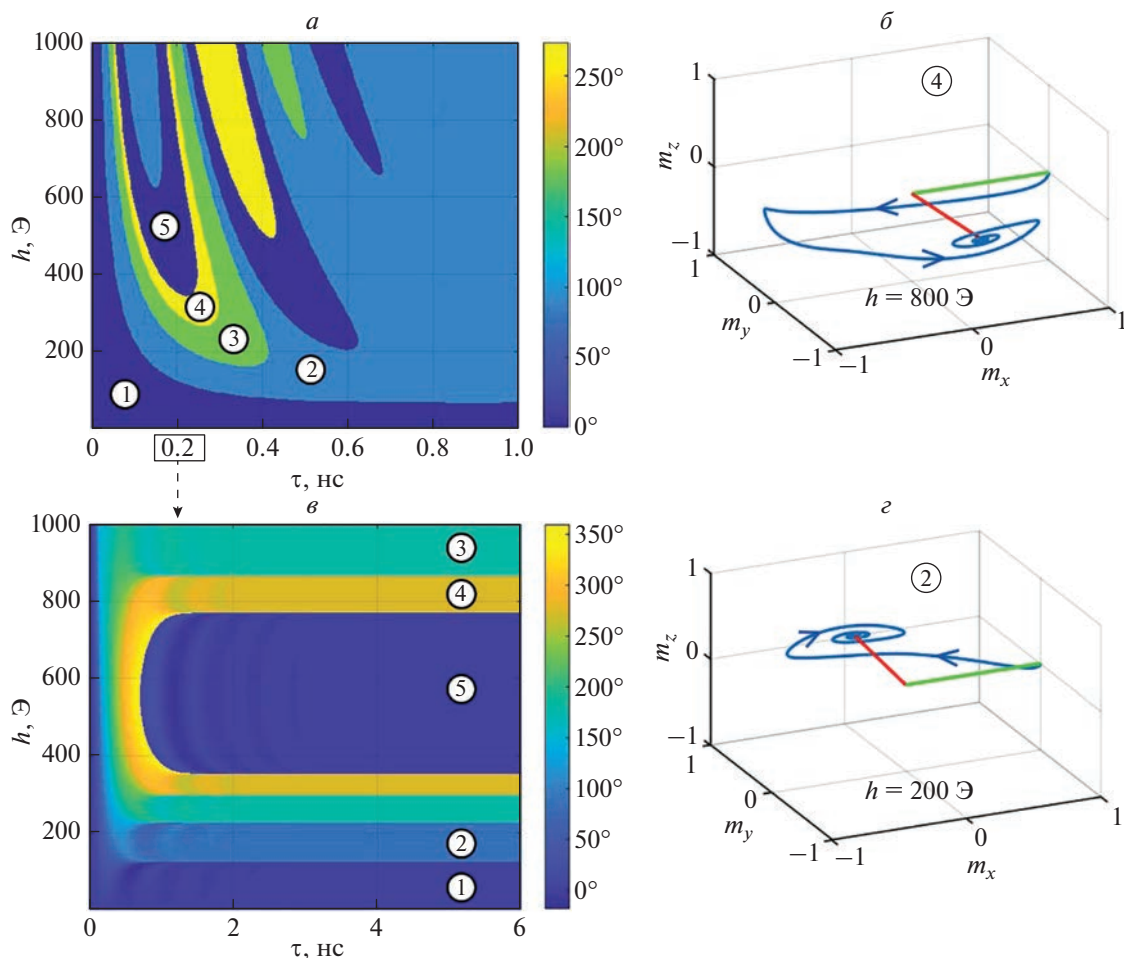


Рис. 3. Диаграммы перемагничивания пленки при подмагничивающем поле $H_0 = 15$ Э в зависимости от амплитуды h и длительности τ импульса (а); от амплитуды h и времени t наблюдения при $\tau = 0.2$ нс (б). Траектория магнитного момента: при $\tau = 0.2$ нс и $h = 800$ Э, соответствующая зоне № 4 (в); при $\tau = 0.2$ нс и $h = 200$ Э, соответствующая зоне № 2 (г). Параметр диссипации $\alpha = 0.1$. На нижней диаграмме перемагничивания номерами отмечены зоны, соответствующие аналогичным областям на верхней диаграмме перемагничивания.

ские барьеры, либо они преодолевают некоторое число барьеров, двигаясь в одном направлении, затем столько же, двигаясь в обратном направлении, либо переходят через $4n$ барьеров с поворотами на углы в $n \cdot 360^\circ$, где n — целое число. В остальных случаях происходит перемагничивание или переориентация вектора намагниченности в один из энергетических минимумов вблизи оси легкого намагничивания. Попадание в один из минимумов происходит в некоторой непрерывной области множества значений варьируемых параметров расчета, что, на графике зависимости угла φ от времени и амплитуды импульса (рис. 3б) соответствует полосам определенной ширины, а на диаграмме перемагничивания (рис. 3а) — непрерывным областям сложной формы. При увеличении длительности импульса время действия поля импульса, направленного вдоль

оси Oy , совпадающей с минимумом энергии соответствующей оси, возрастает и вероятность перехода в этот минимум энергии увеличивается, поэтому площадь области, где вектор намагниченности поворачивается на угол $\varphi = 85^\circ$, становится больше. На рис. 3в, 3г показаны траектории движения вектора намагниченности при амплитудах импульса $h_0 = 800$ и 200 Э, рассчитанные при длительности импульса $\tau = 0.2$ нс и $H_0 = 15$ Э, которые показывают поворот вектора намагниченности в два из четырех энергетических минимумов, лежащих в плоскости пленки. Следует отметить, что наблюдается очень сильная зависимость траектории вектора намагниченности от параметра диссипации α и формы импульса, поэтому вид графиков на рис. 3а, 3в может сильно измениться, например, даже при малом изменении параметра α .

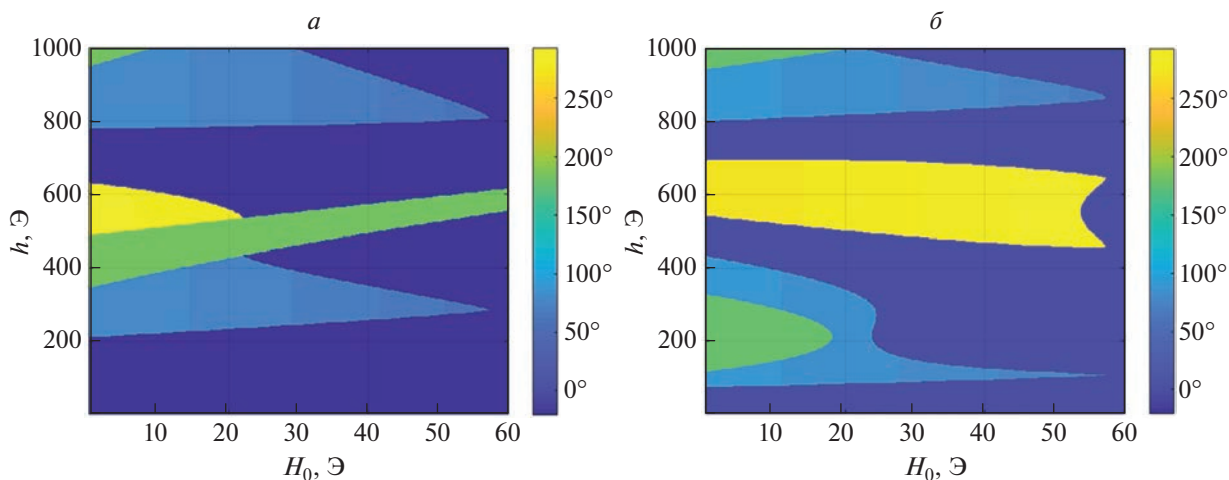


Рис. 4. Диаграммы перемагничивания пленки от подмагничивающего поля H_0 и амплитуды импульса h после релаксации вектора намагниченности: при длительности импульса $\tau = 0.1$ (а) и при 0.4 нс (б). Параметр диссипации $\alpha = 0.1$.

На рис. 4 показаны диаграммы перемагничивания (или зависимости угла φ поворота вектора намагниченности в плоскости Oxy) от значения подмагничивающего поля $\vec{H}_0$, амплитуды импульса h_0 при двух длительностях $\tau = 0.1$ и 0.4 нс. При подмагничивающем поле, большем 56 Э, магнитные энергетические барьеры исчезают и перемагничивания не происходит, поскольку вектор намагниченности возвращается в первоначальное направление вдоль постоянного магнитного поля $\vec{H}_0$. При $\tau = 0.1$ нс в направлении, противоположном полю $\vec{H}_0$ ($\varphi = 180^\circ$), энергетический минимум, в который может ориентироваться вектор намагниченности, существует до полей порядка 250 Э (рис. 3а). При увеличении подмагничивающего поля углы поворота вектора намагниченности у областей с начальными углами 90° и 270° изменяются: один уменьшается, а другой угол увеличивается, поскольку направления минимумов энергии наклоняются в сторону подмагничивающего поля. Как видно из диаграммы, показанной на рис. 4б, для большой длительности импульса $\tau = 0.4$ нс ширина области с начальным углом 270° уменьшается в 1.5 раза при ее неизменной форме, а интервал магнитных полей $0-57$ Э, в котором эта область существует, увеличивается примерно в 3 раза по сравнению с интервалом полей $0-22$ Э для этой области при $\tau = 0.1$ нс. Нижняя область с $\varphi = 0^\circ$ при $\tau = 0.4$ нс расщепляется на две области при подмагничивающем поле $H_0 = 22$ Э и наблюдается при амплитудах импульсов $80-100$ и $350-410$ Э. Отдельно следует сказать про область с углом $\varphi = 180^\circ$. Она занимает наименьшую площадь на диаграммах,

поскольку при увеличении подмагничивающего поля H_0 глубина минимума полной энергии в этом направлении уменьшается, направление становится менее устойчивым, и вектор намагниченности, соответственно, попадает в нее реже.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе выполнены расчеты динамики перемагничивания продольно намагниченной магнитной пленки с параметрами железо-иттриевого граната с примесью кобальта состава $Y_3Fe_{4.97}Co_{0.03}O_{12}$, возбуждаемой линейно поляризованными одиночными магнитными импульсами различной длительности и амплитуды. Предполагалось, что подмагничивающее и возбуждающее поля взаимно перпендикулярны и лежат в плоскости пленки. На основе численных решений системы уравнений (11) для компонент вектора намагниченности были построены диаграммы перемагничивания пленки при действии импульса магнитного поля с амплитудой $0-1000$ Э, длительностью $0-1$ нс и при значении подмагничивающего поля 15 Э. Также построены диаграммы перемагничивания пленки в интервале амплитуд импульса магнитного поля $0-1000$ Э, значениях подмагничивающего поля $0-60$ Э при длительностях импульса 0.1 и 0.4 нс. В расчетах принимались во внимание кубическая магнитная анизотропия кристаллической решетки и анизотропия, создаваемая размагничивающим полем пленки. Следует отметить, что магнитная кристаллическая анизотропия вносит нелинейность, пропорциональную шестой степени относительно проекций вектора намагниченности, поэтому траектории вектора намагниченности имеют слож-

ный вид, приводящий к полученным диаграммам. Подобные сложные режимы прецессии магнитных моментов наблюдались в работах [5, 10–13]. Выявлено, что при подмагничивающем поле, меньшем поля магнитной кристаллической анизотропии, благодаря существующим энергетическим барьерам происходит перемагничивание, переводящие вектор намагниченности в одно из четырех возможных направлений в плоскости пленки. Из-за сильной нелинейности процесса, переход из одного минимума энергии в другой происходит скачкообразно в определенных непрерывных интервалах параметров импульса, поэтому на диаграмме временной зависимости возникают полосы различной ширины, а на диаграмме зависимости от длительности и амплитуды импульса – непрерывные области сложной формы с резкими границами, соответствующие этим минимумам. Когда время наблюдения меньше длительности импульса, на диаграмме временной зависимости можно видеть возникновение областей перемагничивания при различных амплитудах импульсов.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-72-20048).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Scherbakov A.V., Salasyuk A.S., Akimov A.V. et al. // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 105. Art. No. 117204.
2. Kovalenko O., Pezeril Th., Temnov V.V. // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 110. Art. No. 266602.
3. Власов В.С., Голов А.В., Котов Л.Н. и др. // Акуст. журн. 2022. Т. 68. № 1. С. 22; Vlasov V.S., Golov A.V., Kotov L.N. et al. // Acoust. Phys. 2022. V. 68. No. 1. P. 18.
4. Хаников А.Ф. // ЖТФ. 1993. Т. 63. № 10. С. 75.
5. Шапоров В.Н., Власов В.С., Котов Л.Н. // Изв. РАН. Сер. физ. 2022. Т. 86. № 5. С. 753; Shaporov V.N., Kotov L.N., Vlasov V.S. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2022. V. 86. No. 5. P. 634.
6. Гуревич А.Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. М.: Наука, 1973. 592 с.
7. Власов В.С., Котов Л.Н., Шавров В.Г. и др. // Радиотехн. и электрон. 2009. Т. 54. № 7. С. 874; Vlasov V.S., Kotov L.N., Shavrov V.G. et al. // J. Commun. Technol. Electron. 2009. V. 54. No. 7. P. 832.
8. Шавров В.Г., Щеглов В.И. Ферромагнитный резонанс в условиях ориентационного перехода. М.: Физматлит, 2018. 560 с.
9. Бабичев А.П., Бабушкина Н.А., Братковский А.М. и др. Физические величины: Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1991. 1232 с.
10. Шутый А.М., Семенов Д.И. // ФТТ. 2007. Т. 49. № 9. С. 1636; Shutyi A.M., Sementsov D.I. // Phys. Solid State. 2007. V. 49. No. 9. P. 1715.
11. Feron A.M., Camley R.E. // Phys. Rev. B. 2017. V. 95. Art. No. 104421.
12. Власов В.С., Котов Л.Н., Липина Е.С. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2013. Т. 77. № 10. С. 1459; Vlasov V.S., Kotov L.N., Lipina E.S. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2013. V. 77. No. 10. P. 1255.
13. Плешев Д.А., Асадуллин Ф.Ф., Оганезова Н.А. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2019. Т. 83. № 7. С. 987; Pleshchev D.A., Asadullin F.F., Oganezova N.A. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2019. V. 83. No. 7. P. 901.

Magnetization reversal of the longitudinally magnetized film with cubic anisotropy by magnetic pulses

V. N. Shaporov^a, *, L. N. Kotov^a, V. S. Vlasov^a

^a Syktyvkar State University, Syktyvkar, 167000 Russia

*e-mail: shaporov@mail.ru

Magnetization reversal diagrams are constructed for a longitudinally magnetized film with the parameters of yttrium iron garnet doped with cobalt. The film is excited by nanosecond magnetic field pulses with an amplitude of up to 1000 Oe. It is shown that at a magnetizing field smaller than the anisotropy field, under the action of the pulse field, transitions between stable states, characterized by energy minima, occur.

УДК 538.9

СТАБИЛЬНОСТЬ СКИРМИОННОГО КРИСТАЛЛА В ФРУСТРИРОВАННОМ АНТИФЕРРОМАГНИТНОМ БИСЛОЕ НА ТРЕУГОЛЬНОЙ РЕШЕТКЕ

© 2023 г. И. Ф. Шарафуллин¹ *, А. Г. Нугуманов¹, А. Х. Баишева¹, А. Р. Юлдашева¹, Х. Т. Диеп²

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Башкирский государственный университет”, Уфа, Россия

²Лаборатория теоретической физики и моделирования, Университет Сержи – Париж, Сержи – Понтуаз, Франция

*E-mail: SharafullinIF@yandex.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Изучены процессы формирования и условия стабильности скирмионных решеток при термодинамических флуктуациях в магнитоэлектрических пленках, а именно, в фрустрированном антиферромагнитном/сегнетоэлектрическом бислое на треугольной решетке. С помощью адаптированного метода наискорейшего спуска вычислены конфигурации основного состояния с заданными параметрами. С помощью Монте-Карло моделирования исследовано влияние термодинамических флуктуаций, внешнего магнитного поля на конфигурации основного состояния, рассмотрены фазовые переходы, происходящие в рассматриваемой модели.

DOI: 10.31857/S0367676522700909, EDN: NOIGHX

ВВЕДЕНИЕ

Скирмионы в тонких ферромагнитных и антиферромагнитных пленках интенсивно исследуются в последние годы [1–8]. Их небольшой размер в диапазоне от 1 до 100 нм и очень слабый электронный ток около $106 \text{ A} \cdot \text{м}^{-2}$, необходимый для приведения их в движение [1, 9], делают их идеальными кандидатами для будущих устройств считывания и хранения данных. В работе [10, 11] авторы обнаружили, что для интерфейсов в бислоях состава Cr/MoS₂, Fe/MoS₂ и Fe/WSe₂ скирмионные решетки могут возникать при наличии сравнительно слабых взаимодействиях Дзялошинского–Мория в диапазоне экспериментально достижимых значений напряженности внешнего магнитного поля, при этом показано, что размеры скирмионов и магнитных вихрей резко меняются при возрастании внешнего магнитного поля. Уменьшение размеров скирмионов, повышение их устойчивости к комнатным температурам, а также снижение энергозатрат на управление скирмионами являются актуальными проблемами спинтроники. Одним из способов решения указанных проблем является использование искусственных антиферромагнетиков [12], в которых два ферромагнитных слоя связаны антиферромагнитно через немагнитный слой: в таких системах со-

гласно расчетам скирмионы меньше, стабильнее и требуют меньше энергии для манипуляций [13].

Экспериментальные фазовые диаграммы ряда материалов указывают на значительные переходные области между различными фазами (в том числе скирмионами и парамагнитными), что ставит задачу точного определения фазовых границ между скирмионами и геликоидальной структурой. В наноразмерных бислоях магнитоэлектрическое взаимодействие имеет определяющее значение для создания неколлинеарного дальнего спинового упорядочения [14, 15].

Настоящая работа посвящена поиску таких значений параметров взаимодействия и напряженности внешних полей в магнитоэлектрическом бислое, при которых нетривиальные топологические магнитные структуры устойчивы в основном состоянии.

МОДЕЛЬ

Рассмотрим бислой, состоящий из антиферромагнитной и сегнетоэлектрической нанопленки, обе пленки имеют структуру плоской треугольной решетки с одинаковой постоянной решетки. Гамильтониан запишем следующим образом

$$H = H_m + H_f + H_{mf},$$

где H_m и H_f — гамильтонианы антиферромагнитной и сегнетоэлектрической подсистем соответственно, а H_{mf} — гамильтониан магнитоэлектрического взаимодействия на границе раздела двух пленок. Опишем гамильтониан магнитной пленки с помощью спиновой модели Гейзенберга на простой треугольной решетке:

$$H_m = -\sum_{i,j} J_{ij}^m \vec{S}_i \times \vec{S}_j - \sum_i \vec{H} \times \vec{S}_i,$$

где $\vec{S}_i$ — спин на i -м узле решетки, $\vec{H}$ — внешнее магнитное поле, направленное перпендикулярно плоскости пленки вдоль оси z , $J_{ij}^m < 0$ параметр антиферромагнитного взаимодействия между спином и его ближайшими соседями, сумма берется по парам спинов ближайших соседей.

Предполагаем $J_{ij}^m < 0$ одинаковым, а именно J^m , для всех спинов магнитной пленки в плоскости. Для сегнетоэлектрической подсистемы, для простоты, мы предполагаем, что электрические поляризации являются единичными векторами, направленными в направлении $\pm z$. Гамильтониан подсистемы зададим в виде

$$H_f = -\sum_{i,j} J_{ij}^f \vec{P}_i \times \vec{P}_j,$$

где $\vec{P}_i$ — поляризация i -го узла плоской треугольной решетки, $J_{ij}^f > 0$ — параметр взаимодействия между ближайшими соседями, сумма берется по соседним узлам. Аналогично антиферромагнитной подсистеме, мы возьмем одинаковое значение $J_{ij}^f = J^f$ для всех сегнетоэлектрических узлов. Гамильтониан магнитоэлектрического взаимодействия на границе раздела двух пленок зададим в виде

$$H_{mf} = \sum_{i,j,k} J_{ijk}^{mf} \vec{D}_{i,j} \cdot [\vec{S}_i \times \vec{S}_j].$$

В этом выражении $J_{ijk}^{mf} \vec{D}_{i,j}$ играет роль вектора Дзялошинского—Мории, лежащего в плоскости xy .

Предположим для нашей модели $J_{ijk}^{mf} = J_{ij}^{mf} P_k$, J_{ij}^{mf} — это параметр магнитоэлектрического взаимодействия (играет роль вектора Дзялошинского — Мории) между электрической поляризацией P_k на интерфейсном сегнетоэлектрическом слое и двумя ближайшими спинами $\vec{S}_i$ и $\vec{S}_j$, на интерфейсном антиферромагнитном слое. Предполагаем, что величина $J_{ij}^{mf} = J^{mf}$ независима от (i, j) . Выражение для магнитоэлектрического взаимодействия тогда примет вид

$$H_{mf} = \sum_{i,j,k} J^{mf} P_k (\vec{R} \times \vec{r}_{i,j}) \cdot [\vec{S}_i \times \vec{S}_j].$$

Как можно видеть из последнего выражения параметр взаимодействия на интерфейсе пропорционален среднему значению $\langle P_k \rangle$, в свою очередь зависящему от T . Если $\langle P_k \rangle$ примет нулевое значение до разрушения скирмионной структуры, в этом случае скирмионная структура не формируется. Поэтому сегнетоэлектрическую пленку мы задаем моделью Изинга с параметром сегнетоэлектрического взаимодействия J^f , а поляризацию определяем Изинговским вектором, это связано с тем, что необходимо, чтобы температура перехода в сегнетоэлектрической пленке была выше, чем у магнитной подсистемы. Следует отметить, что переходы в магнитной подсистеме определяются конкуренцией между T и магнитным упорядочением (скирмионами), которое, в свою очередь, является результатом конкуренции между обменным взаимодействием, магнитоэлектрическим взаимодействием, (а именно $\langle P_k \rangle$) и внешним магнитным полем H . Предполагаем, что магнитоэлектрическое взаимодействие имеет место только для ближайших соседей.

ОСНОВНОЕ СОСТОЯНИЕ

Для определения основного состояния спиновой конфигурации, нужно определить минимальную энергию системы. В самом простом случае ($J^m = J^f = 0$) минимум энергии достигается за счет того, что соседние спины, находящиеся в плоскости интерфейса перпендикулярны друг к другу, при отсутствии обменных взаимодействий (см. рис. 1).

Но с появлением обменного взаимодействия спины начинают образовывать неколлинеарную структуру за счет конкуренции коллинеарной конфигурации с перпендикулярной конфигурацией магнитоэлектрического взаимодействия.

Аналитический подсчет конфигурации основного состояния при наличии рассматриваемого числа конкурирующих взаимодействий является затруднительным, поэтому расчет основного состояния выполняется с помощью численного метода наискорейшего спуска. Этот метод является усовершенствованным методом градиентного спуска. Его преимущество заключается в большой скорости нахождения минимума функции, метод состоит в минимизации энергии всей системы, путем уменьшения энергии взаимодействия каждого спина с его ближайшими соседними узлами. Алгоритм заключается в следующем:

- 1) Задаем случайную спиновую конфигурацию.
- 2) За точку отсчета выбираем первый спин и для того чтобы энергия взаимодействия этого спина была минимальной, рассчитывается ло-

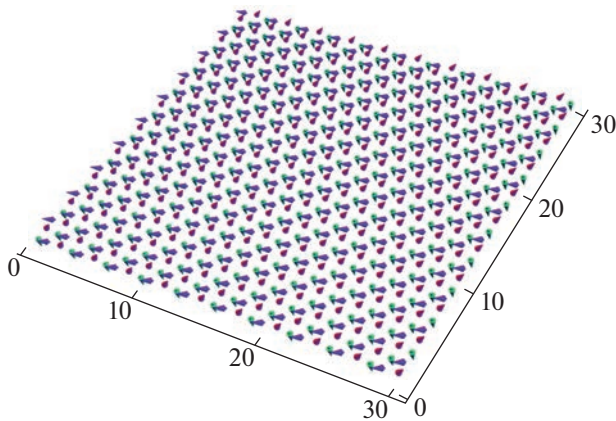


Рис. 1. Спиновая конфигурация основного состояния при наличии только магнитоэлектрического взаимодействия ($J^{mf} = -0.5$, $J^m = J^f = 0$) полученная численно методом наискорейшего спуска. Фиолетовая стрелка соответствует спинам, расположенным в xy плоскости, красной стрелкой обозначены спины, направленные перпендикулярно xy плоскости вдоль оси oz ($+z$), зеленой стрелкой обозначены спины, направленные противоположно оси oz ($-z$).

кальное поле с учетом всех взаимодействий, действующих на данный спин.

3) Выравниваем рассматриваемый спин вдоль вычисленного локального поля. Таким образом,

достигается минимальное значение энергии взаимодействия спина с его ближайшими соседями.

4) Далее переходим к следующему узлу и повторяем эту процедуру до тех пор, пока мы не рассмотрим все узлы решетки (в работе рассматривались решетки размерами 60×60 , 100×100 , 400×400 . Эти шаги повторяются до тех пор, пока полная энергия не станет минимальной — это одна итерация.

В работе представлены результаты моделирования, выполненные в результате 100000 итераций.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Результаты расчетов основного состояния бислоя антиферромагнетик/сегнетоэлектрик на треугольной решетке в рамках рассматриваемой модели позволяют сделать вывод о том, что скирмионная решетка формируется при $J^m = -1$, $J^f = 1$ для следующего диапазона значений параметра магнитоэлектрического взаимодействия $J^{mf} \in (-0.75, -0.35)$ и напряженности внешнего магнитного поля, приложенного перпендикулярно плоскости бислоя в диапазоне $H \in (2, 4)$. На рис. 2 изображен пример такой структуры при $J^{mf} = -0.5$ и $H = 3.5$. Это срез бислоя с линейными размерами 120×120 , можем видеть, что скирмионы формируют решетку, причем каждая из

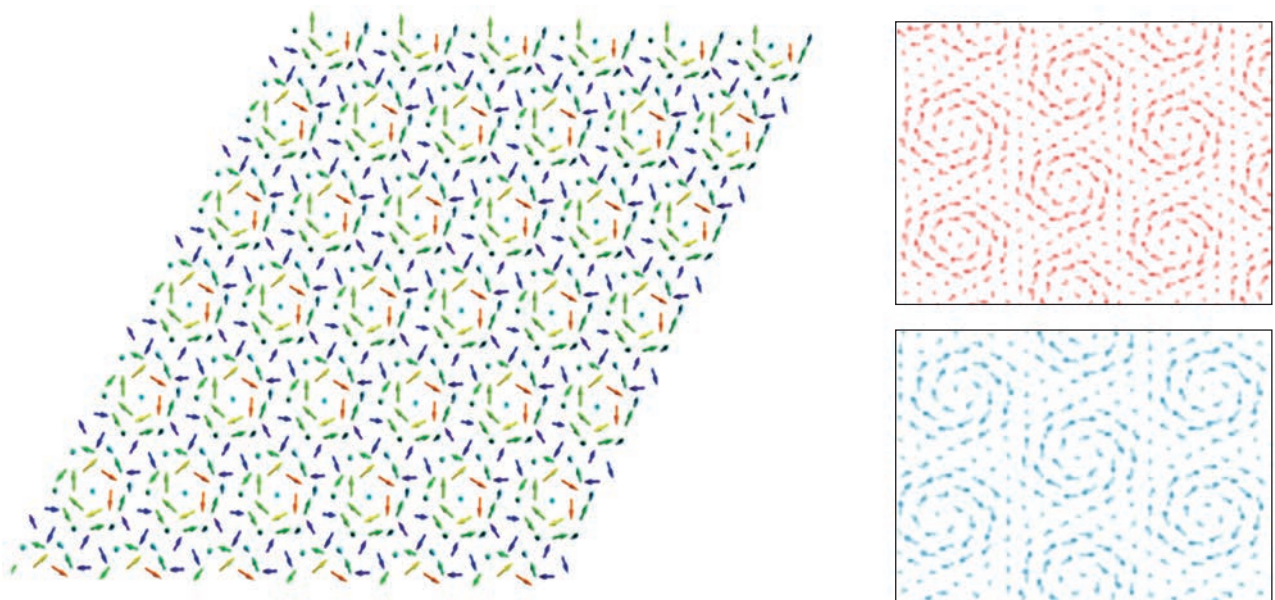


Рис. 2. Спиновая конфигурация основного состояния антиферромагнитного слоя с параметрами $J^{mf} = -0.5$ и $H = 3.5$, $J^m = -1$, $J^f = 1$, полученная численно методом наискорейшего спуска (слева). На правой половине рисунка представлена решетка скирмионов размером 60×60 узлов, красным цветом выделен скирмион с направлением спинов по часовой стрелке (скирмион меньшего радиуса на левом рисунке), синим цветом выделен скирмион с направлением спинов против часовой стрелки (скирмион большего радиуса на левом рисунке).

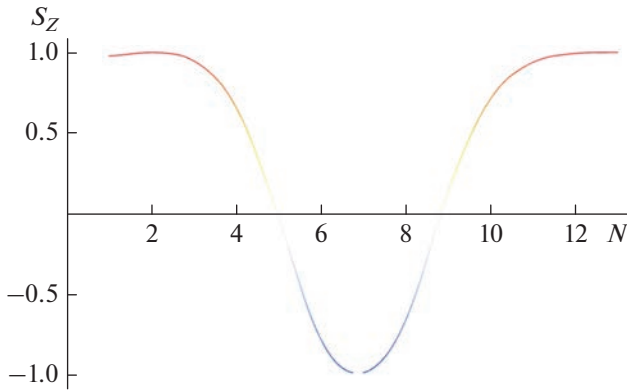


Рис. 3. Z -компоненты спинов вдоль диаметра скирмиона, при $J^{mf} = -0.5$ и $H = 3.5$, $J^m = -1$, $J^f = 0$.

скирмионных структур состоит из двух скирмионов с противоположным друг другу направлением вращения спинов. На рис. 3 показана зависимость Z -компоненты спина вдоль диаметра скирмиона. Результаты моделирования подтверждают, что спины за пределами вихря направлены вдоль внешнего поля, спин в центре вихря направлен противоположно внешнему полю, а вдоль диаметра скирмиона наблюдается разворот спина в плоскости, что подтверждает блоховскую скирмионную структуру (см. рис. 3). Результаты расчетов свидетельствуют о том, что при возрастании значения напряженности магнитного поля больше $H = 4$ скирмионная конфигурация основного состояния становится менее совершенной и затем исчезает при $H = 4.5$ для диапазона значений параметра магнитоэлектрического взаимодействия $J^{mf} \in (-0.75, -0.35)$.

Для моделирования фазовых переходов и расчета динамики физических величин в зависимости от температуры в магнитоэлектрическом бислое методами Монте-Карло используем алгоритм Метрополиса. В основном расчеты проводятся для системы с размерами $N \times N \times 2$, где $N = 100$. Для достижения статистического равновесия на каждом узле алгоритм Метрополиса выполняет $5 \cdot 10^5$ Монте-Карло шагов и $9 \cdot 10^5$ Монте-Карло итераций на каждом узле для выполнения усреднения. Проследим за динамикой упорядочения системы от $T = 0$, поэтому мы должны сравнить конфигурацию при температуре T в момент времени t с конфигурацией основного состояния, исходя из которой осуществляется медленный нагрев системы при процедуре Монте-Карло моделирования.

Сравним фактическую конфигурацию, полученную при медленном нагреве с конфигурацией основного состояния, для этого выполним усред-

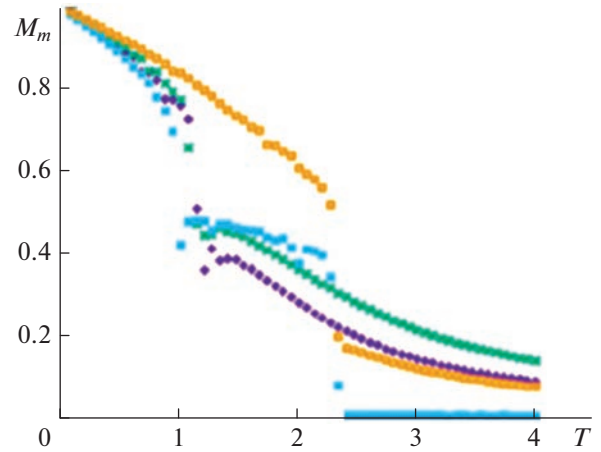


Рис. 4. Зависимость параметра порядка магнитной пленки от температуры T . Фиолетовые точки соответствуют: $J^{mf} = -0.45$, $H^z = 2$; зеленый цвет — $J^{mf} = -0.5$, $H^z = 2$; голубой цвет — $J^{mf} = -0.75$, $H^z = 2$; желтые точки — $J^{mf} = -0.5$, $H^z = 0$.

нение проекции фактической конфигурации на выбранное основное состояние спина на этом же узле $\bar{S}_i^0 (T = 0)$. На рис. 4 показаны температурные зависимости проекции усреднения скалярного произведения спиновой конфигурации при заданной температуре на спиновую конфигурацию основного состояния для различных значений параметра магнитоэлектрического взаимодействия $J^{mf} = -0.40$, $J^{mf} = -0.50$, $J^{mf} = -0.75$, $J^{mf} = -0.85$, $H = 2.0$. После фазового перехода спины выравниваются в направлении поля, что приводит к ненулевым значениям параметра порядка после перехода (рис. 4).

Графики зависимостей параметра порядка магнитной пленки от температуры указывают на то, что при больших значениях J^{mf} в магнитной пленке происходят фазовые переходы первого рода при $T_C^m = 1.05$ для ($J^{mf} = -0.45$, $H^z = 2$) (фиолетовый график), при $T_C^m = 1.12$ для ($J^{mf} = -0.5$, $H^z = 2.0$) (зеленый график) и при $T_C^m = 1.25$ для ($J^{mf} = -0.75$, $H^z = 2$) (голубой график). В случае отсутствия внешнего магнитного поля, а именно для частного случая ($J^{mf} = -0.75$, $H^z = 0$) (желтый график), фазовый переход первого рода типа “порядок–беспорядок”, происходит при $T_C^m = 2.3$.

Остановимся на природе перехода, показанного на рис. 4. В случае наличия внешнего магнитного поля первый фазовый переход при температуре ($T \sim 1.05 - 1.25$) обусловлен разрушением упорядоченной скирмионной магнитной структуры. При дальнейшем повышении температуры скирмионы аннигилируют. После этого перехода z -компоненты векторов спина, не являющиеся нулевыми при воздействии внешнего поля, стремятся к нулю только при высоких $T \approx 2.3$, (результаты моделирования свидетельствуют о том, что при $T \approx 2.3$ происходит переход порядок-беспорядок в сегнетоэлектрическом слое). Отметим, что в случае отсутствия воздействия внешнего магнитного поля (желтый график), не происходит формирования скирмионов и, следовательно, при возрастании температуры не происходит фазового перехода, связанного с разрушением скирмионной структуры, но при $T_c^m = 2.3$ осуществляется фазовый переход из упорядоченной в разупорядоченную фазу, когда происходит одновременное разрушение магнитного и коллинеарного сегнетоэлектрического упорядочения. Происходящий переход первого рода объясняется тем, что рассматриваемая система является фрустрированной из-за наличия сильных конкурирующих взаимодействий.

Скирмионная решетка в фрустрированном антиферромагнитном/сегнетоэлектрическом бислое на треугольной решетке стабильна в большом диапазоне значений внешнего магнитного поля и в температурном диапазоне (0.95; 1.3). На данном этапе следует отметить, что приведенные выше результаты представлены в безразмерных единицах, а именно энергия в единицах обменного антиферромагнитного взаимодействия J^m , и температура в единицах J^m/k_B . Результаты работы могут быть использованы для сравнения материалов с различными значениями J^m . Например, если известно из экспериментальных данных [12], что фазовый переход, связанный с разрушением скирмионов происходит при $T_c^{exp} = 200$ К, мы можем вычислить эффективный обмен J^{eff} , используя, например, уравнение среднего поля

$$T_c^{exp} = \frac{2}{3k_B} ZS(S+1)J^{eff};$$

$$J^{eff} = 34.51 \times 10^{-23} \text{ Дж} = 47.63 \text{ К}.$$

Здесь принято, что $Z = 6$ для треугольной решетки, $S = 1$ (амплитуда спина), $k_B = 1.3807 \cdot 10^{-23}$ Дж/К. J^{eff} представляет собой комбинацию обменного антиферромагнитного и магнитоэлектрического

взаимодействия. Зная основное состояние, и температуру перехода можно определить эти значения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, рассмотрены процессы формирования и условия стабильности скирмионной решетки при термодинамических флуктуациях в магнитоэлектрических пленках, а именно, в фрустрированном антиферромагнитном/сегнетоэлектрическом бислое на треугольной решетке. Рассматриваемая модель допускает существование устойчивой скирмионной решетки, с помощью математического моделирования установлены диапазоны значений параметров взаимодействия и напряженности внешнего магнитного поля в магнитоэлектрическом бислое, при которых нетривиальные топологические магнитные структуры устойчивы в основном состоянии.

С помощью адаптированного метода наискорейшего спуска вычислены конфигурации основного состояния с заданными параметрами. С помощью Монте-Карло моделирования исследовано влияние термодинамических флуктуаций, внешнего магнитного поля на конфигурации основного состояния, рассмотрены фазовые переходы, происходящие в рассматриваемой модели.

Ш.И.Ф., Н.А.Г, Б.А.Х, Ю.А.Р благодарят за финансовую поддержку в ходе данной работы государственное задание на выполнение научных исследований молодежными лабораториями (приказ MN-8/1356 от 20.09.2021).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Samardak A.S., Kolesnikov A.G., Davydenko A.V. et al. // Phys. Met. Metallogr. 2022. V. 123. P. 238.
2. Fert A., Reyren N., Cros V. // Nature Rev. Mater. 2017. V. 2. No. 7. Art. No. 17031.
3. Göbel B., Mertig I., Tretiakov O.A. // Phys. Reports. 2021. V. 895. P. 1.
4. Marchenko A.I. Krivoruchko V.N. // J. Magn. Magn. Mater. 2015. V. 377. P. 153.
5. Sapozhnikov M.V. // J. Magn. Magn. Mater. 2015. V. 396. P. 338.
6. Nagaosa N. Tokura Y. // Nature Nanotechnol. 2013. V. 8. No. 12. P. 899.
7. Manchon A., Železný J., Miron J. et al. // Rev. Mod. Phys. 2019. V. 91. No. 3. Art. No. 035004.
8. Sharafullin I.F., Kharrasov M.K., Diep H.T. // Phys. Rev. B. 2019. V. 99. No. 21. Art. No. 214420.
9. Ding J., Yang X., Zhu T. // J. Phys. D. 2015. V. 48. No. 11. Art. No. 115004.
10. Fang W., Raeliarijaona A., Chang P.H. et al. // Phys. Rev. Mater. 2021. V. 5. No. 5. Art. No. 054401.
11. Heide M., Bihlmayer G., Blügel S. // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. No. 14. Art. No. 140403(R).

12. *Zhang X., Zhou Y., Ezawa M.* // Nature Commun. 2016. V. 7. No. 1. P. 1.
13. *Zhang X., Ezawa M., Zhou Y.* // Phys. Rev. B. 2016. V. 94. No. 6. Art. No. 064406.
14. *Шарафуллин И.Ф., Дьен Х.Т.* // Письма в ЖЭТФ. 2021. Т. 114. № 9. С. 610; *Sharafullin I.F., Diep H.T.* // JETP Lett. 2021. V. 114. No. 9. P. 536.
15. *Nugumanov A.G., Sharafullin I.F.* // Lett. Mater. 2022. V. 12. No. 2. P. 116.

Stability of a skyrmion crystal in a frustrated antiferromagnetic bilayer on a triangular lattice

I. F. Sharafullin^{a, *}, A. G. Nugumanov^a, A. H. Baisheva^a, A. R. Yuldasheva^a, H. T. Diep^b

^a *Bashkir State University, Ufa, 450076 Russia*

^b *Laboratoire de Physique Theorique et Modelisation, Université Cergy-Paris, CNRS, Cergy-Pontoise, UMR 8089, 95302 France*

^{*}*e-mail: SharafullinIF@yandex.ru*

We studied the processes of formation and conditions of stability of skyrmion lattices during thermodynamic fluctuations in magnetoelectric films, namely, in a frustrated antiferromagnetic/ferroelectric bilayer on a triangular lattice. We calculate the ground state configurations with given parameters using the steepest descent method. We consider the thermodynamic fluctuations in influence of an external magnetic field on the ground state configurations and phase transitions occurring in the model using Monte Carlo simulation.

Фундаментальные проблемы физики функциональных материалов

Редактор тематического выпуска
докт. физ.-мат. наук **Р. Ф. Мамин**

УДК 537.9:537.6:53.06

ИССЛЕДОВАНИЕ ОСОБЕННОСТЕЙ СВЕРХПРОВОДЯЩЕГО СПИНОВОГО КЛАПАНА НА БАЗЕ Fe/Nb

© 2023 г. А. А. Камашев¹, *, А. А. Валидов¹, Н. Н. Гарифьянов¹, И. А. Гарифуллин¹

¹Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

*E-mail: kamandi@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Изучены новые структуры сверхпроводящих спиновых клапанов конструкций Fe₂Nb/Fe₁/CoO_x и Fe₂/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe₁/CoO_x. Работа этих структур построена за пределами классического эффекта близости сверхпроводник/ферромагнетик. Интерфейс сверхпроводник/ферромагнетик в этих структурах разделен дополнительным изолирующим слоем. Согласно результатам наших исследований, наиболее перспективными конструкциями для дальнейшего исследования являются конструкции Fe₂/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe₁/CoO_x.

DOI: 10.31857/S0367676522700910, EDN: NONRGT

ВВЕДЕНИЕ

В последние десятилетия сверхпроводящая спинтроника вызывает огромный интерес во всем мире. Большое количество разнообразных работ посвящено созданию, исследованию и моделированию различных устройств сверхпроводящей спинтроники (см., например, обзор [1]). Логические устройства типа сверхпроводник/ферромагнетик/сверхпроводник (С/Ф/С) могут оказаться перспективным для реализации в квантовой логике [2]. Элемент квантового кубита [3, 4] основан на использовании джозефсоновского π -контакта [5, 6].

Явления ферромагнетизма и сверхпроводимости антагонистичны друг к другу. Ферромагнетизм сильно подавляет сверхпроводимость. Это связано с тем, что ферромагнетизм предполагает параллельную (П) ориентацию спинов, а сверхпроводимость антипараллельную (АП), так как спины электронов куперовской пары в сверхпроводнике противоположно направлены. В искусственно созданных слоистых гетероструктурах взаимодействие этих явлений получило название эффекта близости сверхпроводник/ферромагнетик (С/Ф). Более детально все особенности этого эффекта описаны в работах [7–10].

В конце 1990-х гг. были предложены две теоретические модели сверхпроводящего спинового клапана (ССК), основанных на эффекте близости сверхпроводник/ферромагнетик. Первая модель Ф1/Ф2/С была предложена Санжиун О и др. [11]. Другая модель Ф1/С/Ф2 была представлена Таги-

ровым [12]. Принцип работы обеих моделей одинаков. Эффект сверхпроводящего спинового клапана состоит в различной степени подавления сверхпроводимости в искусственно созданных тонкопленочных мультислоях Ф1/Ф2/С или Ф1/С/Ф2 для параллельной (П) и антипараллельной (АП) взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных слоев Ф1 и Ф2. Таким образом, эта разница приводит к более низкому значению температуры перехода в сверхпроводящее состояние в случае параллельной ориентации намагниченностей Ф-слоев ($T_c^П$), чем при антипараллельной ориентации ($T_c^{АП}$). Главным условием для возможности контроля за сверхпроводящим током в структурах ССК является: $\Delta T_c > \partial T_c$, где $\Delta T_c = T_c^{АП} - T_c^П$ – эффект сверхпроводящего спинового клапана; ∂T_c – ширина сверхпроводящего перехода. Сверхпроводящий спиновый клапан перспективен в качестве пассивного элемента в сверхпроводящей спинтронике. Впервые экспериментально реализовать сверхпроводящий спиновый клапан удалось в нашей группе в 2010 г. в конструкции ССК Fe₁/Cu/Fe₂/In [13].

В ряде работ (см., например, [8–10, 14]) предсказана генерация далекодействующей триплетной компоненты (ДТК) сверхпроводящего конденсата в структурах сверхпроводник/ферромагнетик. В однородном ферромагнетике эта компонента имеет нулевой спин куперовской пары $S_z = 0$. Поэтому,

ОБРАЗЦЫ

такая компонента не может быть экспериментально обнаружена при исследовании транспортных свойств системы. Однако, при наличии магнитных неоднородностей или Ф2-слоя с неколлинеарной ориентацией намагниченности к Ф1-слою полный спин куперовской пары становится $S_z = \pm 1$ [15], и ее можно зафиксировать по аномально глубокому проникновению куперовской пары в ферромагнетик. Как следует из работы Фомина и др. [16], наличие минимума T_c вблизи ортогональной ориентации намагниченностей Ф-слоев однозначно свидетельствует о генерации ДТК. Мы неоднократно получали экспериментальное подтверждение существования ДТК для структур ССК Ф1/Ф2/С. Впервые это было нами продемонстрировано для структур спинового клапана $\text{CoO}_x/\text{Fe1}/\text{Cu}/\text{Fe2}/\text{Pb}$ в работе [17]. Наличие триплетного вклада в величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана было также показано в работах [18–22]. В наших последних работах [23, 24], мы продемонстрировали гигантскую величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана более 0.5 K, что является рекордом эффекта ССК в этих магнитных полях для структур модели Ф1/Ф2/С. Основной вклад в величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана в работах [23, 24] вносили дальностствующие триплетные компоненты сверхпроводящего конденсата.

Необходимо отметить, что на сегодняшний день классический эффект близости С/Ф в структурах ССК, практически полностью изучен. Как показывают результаты наших работ [23, 24] и результаты других групп [25] уже сейчас достигнуты предельные значения эффекта ССК с использованием различных сплавов и элементных ферромагнетиков в структурах Ф1/Ф2/С. В связи с этим необходимо начать изучение принципиально новых структур. В настоящей работе мы исследовали структуры ССК, основанные на неизученном эффекте близости сверхпроводник/ферромагнетик с изолирующими слоями, где отсутствовал прямой интерфейсный контакт между сверхпроводником и ферромагнетиком. В данной работе были исследованы структуры $\text{Fe2}/\text{Nb}/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$ и $\text{Fe2}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$. В структурах $\text{Fe2}/\text{Nb}/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$ в качестве изолирующего слоя использовался “мертвый” слой (“мертвая” зона), которая образуется в результате взаимной диффузии атомов ниобия и железа через интерфейс. Наличие такой “мертвой” зоны на границе раздела Fe/Nb было показано в экспериментах Мюге с сотрудниками в работах [26–28]. В структурах $\text{Fe2}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$ в качестве изолирующего слоя использовался оксид алюминия (Al_2O_3). Наиболее интересные результаты были получены для структур $\text{Fe2}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$.

Изготовлены и исследованы структуры сверхпроводящего спинового клапана $\text{Fe2}/\text{Nb}/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$ и $\text{Fe2}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Fe1}/\text{CoO}_x$. Образцы изготовлены на напылительной установке фирмы производства BESTEC с использованием классического метода электронно-лучевого испарения в сверхвысоком вакууме $1 \cdot 10^{-9}$ мбар в Казанском физико-техническом институте. Напыление оксида кобальта и оксида алюминия проводилось в два этапа. Сначала напылялся Co или Al, затем держатель образцов перемещался в загрузочный шлюз и выдерживался в течение 2 ч в атмосфере кислорода при давлении 100 мбар. Образцы представляли собой полосы $1 \times 15 \text{ мм}^2$, нанесенные на монокристаллическую подложку MgO (001). В процессе приготовления подложка ориентировалась таким образом, чтобы легкая ось Ф-слоев совпадала с длинной стороной образца. Для приготовления слоев ССК были использованы сверхчистые мишени железа (Fe), алюминия (Al), ниобия (Nb) и кобальта (Co) с чистотой выше значения 4N (концентрация примеси менее 0.01%). Скорость напыления слоев Fe, Al и Co составляла 0.5 Å/с, а скорость напыления сверхпроводящего слоя Nb составляла 1.5 Å/с. В напылительной камере установлено 4 различных мишени, что позволяет осуществлять напыление различных материалов в одном вакуумном цикле. Скорость осаждения контролировалась при помощи водоохлаждаемого кварцевого осциллятора. Специальный самодельный держатель образцов позволял готовить 8 различных образцов за один вакуумный цикл. Как показали наши предварительные исследования, качественные структуры сверхпроводящего спинового клапана на базе Fe/Nb получаются при приготовлении структур на нагретые подложки до температур выше 600 K. Дизайн исследуемых образцов изображен на рис. 1. Параметры исследуемых образцов представлены в табл. 1.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Оптимальная толщина слоя ниобия Nb была определена при изучении двухслойных систем Fe/Nb и трехслойных систем $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$ из кривых $T_c(d_{\text{Nb}})$ (см. рис. 2), измеренных при постоянной толщине $d_{\text{Fe}} = 10 \text{ нм}$, что намного превышает глубину проникновения ξ_h куперовских пар в Ф-слой железа. Основываясь на наших данных по зависимости $T_c(d_{\text{Fe}})$ при фиксированном значении d_{Nb} , мы оценили эту величину как $\xi_h \sim 1 \text{ нм}$. Согласно рис. 2, в области больших толщин ниобия T_c медленно уменьшается с уменьшением d_{Nb} . Ниже $d_{\text{Nb}} \sim 30 \text{ нм}$ для образцов серии Fe/Nb и $d_{\text{Nb}} \sim 10 \text{ нм}$ для образцов серии $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$ значение T_c начинает резко уменьшаться. При $d_{\text{Nb}} <$

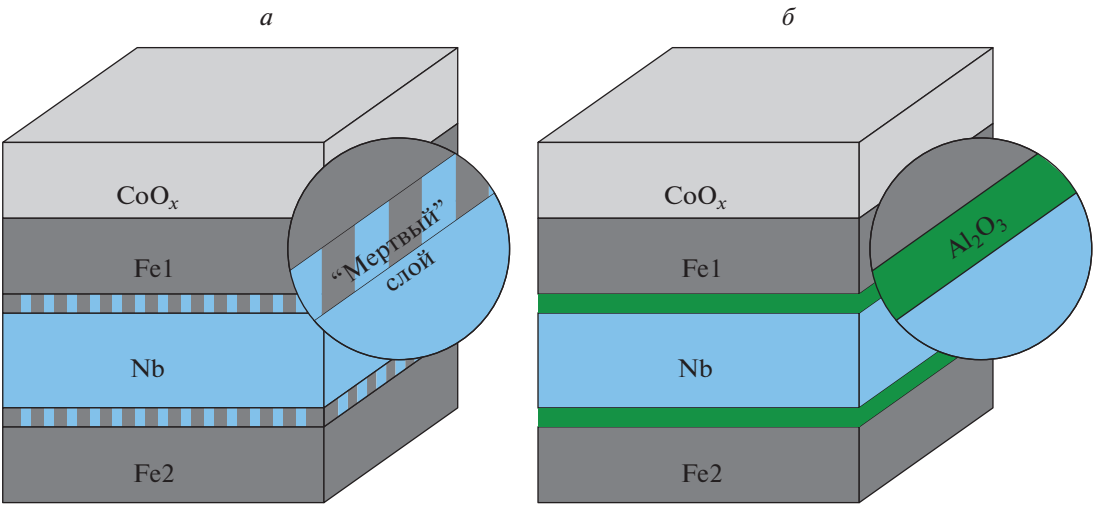


Рис. 1. Дизайн исследуемых образцов: Fe2/Nb/Fe1/CoO_x (а) и Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x (б).

< 15 нм для образцов серии Fe/Nb и при $d_{Nb} < 3$ нм для образцов серии Fe/Al₂O₃/Nb T_c становится меньше 1.5 К. Основываясь на результатах, представленных на рис. 2, были выбраны следующие оптимальные толщины сверхпроводящих слоев $d_{Nb} \sim 35$ нм для образцов серии Fe/Nb и $d_{Nb} \sim 4$ нм для образцов серии Fe/Al₂O₃/Nb. Для проверки воспроизводимости параметров были повторены несколько образцов из серии 1а и 1б (см. рис. 2). Как видно из рис. 2, свойства наших образцов воспроизводимы от серии к серии.

Была проведена магнитная характеристика образцов серии 1а и 1б для определения и оценки наличия “мертвого” слоя (“мертвой” зоны) в интерфейсе Fe/Nb. Магнитная характеристика проводилась на установке PPMS-9 (Quantum Design). Согласно нашим оценкам, толщина “мертвого” слоя составила ~ 0.5 нм. Эти результаты хорошо согласуются с результатами, полученными ранее в работах [26–28].

Значения T_c определялись по изменению сопротивления при помощи стандартного 4-х контактного метода на постоянном токе на установке, которая была создана на базе спектрометра ЭПР X-диапазона фирмы Bruker. В состав установки входит электромагнит с малым (меньше 20 Э) остаточным магнитным полем, позволяющий сканировать магнитное поле, и специально сконструированный измерительный криостат. Перед каждым измерением, проводилась специальная процедура юстировки образца относительно оси вращения для того, чтобы исключить составляющую магнитного поля, перпендикулярную к плоскости образца.

Для серий образцов АА 3 и АА 4 была изучена зависимость T_c от угла α между направлением поля охлаждения и внешним магнитным полем. В наших структурах вектор намагниченности Fe1-слоя остается зафиксированным из-за закрепления антиферромагнитным слоем CoO_x (температура Нееля $T_N \sim 250$ К). Направление век-

Таблица 1. Параметры исследуемых образцов, представленных на рис. 1. Серия АА 3: Fe2(d_{Fe})/Nb(35 нм)/Fe1(2.5 нм)/CoO_x(3 нм); Серия АА 4: Fe2(d_{Fe})/Al₂O₃(2 нм)/Nb(4 нм)/Al₂O₃(2 нм)/Fe1(3 нм)/CoO_x(3 нм)

Серия образцов	Номер образца	d_{Fe} , нм
АА 3	1	0.7
	2	0.9
	3	1
	4	1.2
АА 4	1	1
	2	2
	3	5
	4	10

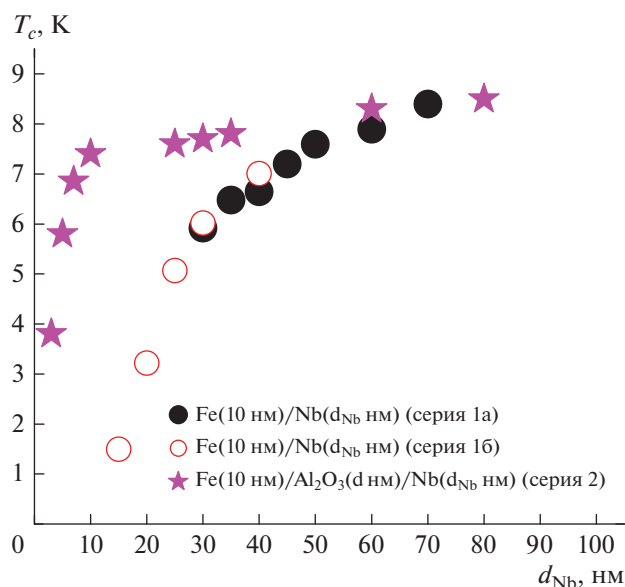


Рис. 2. Зависимость T_c от толщины Nb-слоя для структур Fe(10 нм)/Nb и Fe(10 нм)/Al₂O₃(2 нм)/Nb.

тора намагниченности Fe2-слоя является свободным. Наиболее интересные результаты удалось получить для образцов АА 3-3 и АА 4-4. Согласно результатам, представленным на рис. 3а, видно, что для образцов серии АА 3 не наблюдается никаких эффектов. Величина эффекта сверхпроводящего спинового клапана фактически равна 0. Согласно рис. 3б, для образца из серии АА 4 наблюдается немонотонная зависимость $T_c(\alpha)$ с характерным минимумом вблизи ортогональной ориентации намагниченностей. Согласно теории Фомина и др. [16] такое поведение зависимости $T_c(\alpha)$ свидетельствует о генерации дальнедействующих триплетных компонент сверхпроводящего конденсата в наших образцах.

Согласно нашим результатам, можно заключить, что наличие “мертвого” слоя в структурах Fe2/Nb/Fe1/CoO_x не позволяет наблюдать эффектов сверхпроводящего спинового клапана. Мы фиксируем влияние ферромагнетизма на сверхпроводимость (подавление T_c), но зафиксировать взаимного влияния направления векторов намагниченностей на ΔT_c пронаблюдать не удается. В структурах Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x, где используется Al₂O₃ в качестве изолирующего слоя в интерфейсе Fe/Nb, обнаружена небольшая величина эффекта ΔT_c . Остается непонятным почему величина эффекта спинового клапана в структурах Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x зависит от величины внешнего магнитного поля. Подобный эффект наблюдался для структур с полуметаллическими ферромагнитными материалами [23–25]. Данный результат требует до-

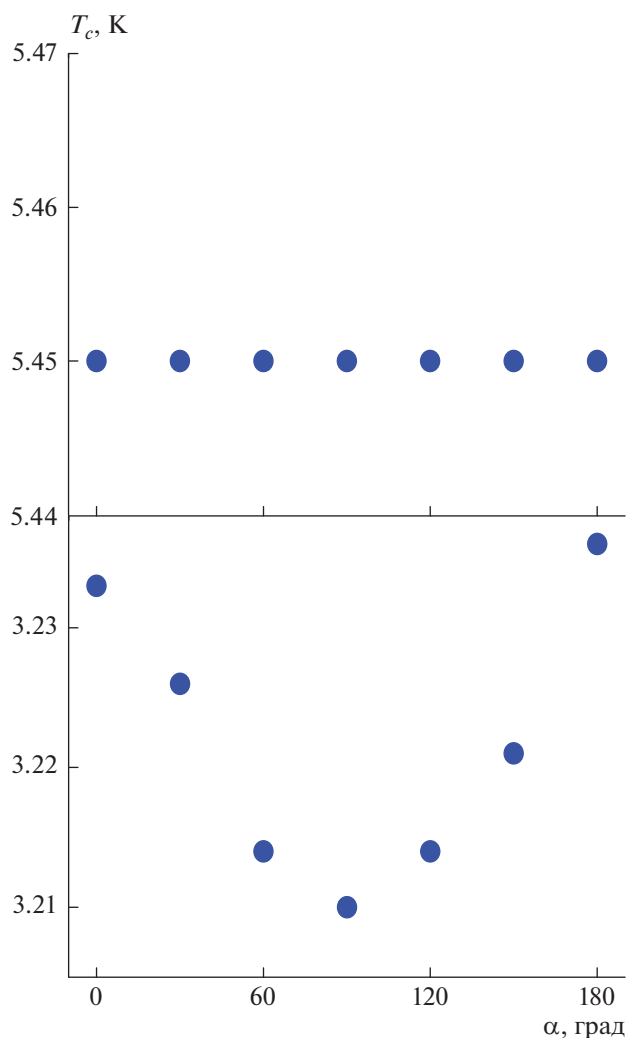


Рис. 3. Зависимость T_c от угла между намагниченностями слоев Fe1 и Fe2 при вращении магнитного поля величиной $H_0 = 7000$ Ое, лежащего в плоскости образцов: для образца АА 3-3 (а); для образца АА 4-4 (б).

полнительного теоретического обсуждения. Для структур Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x удалось обнаружить триплетный вклад в величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана, составляющую порядка 30 мК (см. рис. 3).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучены структуры сверхпроводящего спинового клапана конструкций Fe2/Nb/Fe1/CoO_x и Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x. Для структур Fe2/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe1/CoO_x удалось обнаружить триплетный вклад в величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана, составляющую порядка 30 мК.

Полученные результаты позволяют предположить, что структуры со специально приготовлен-

ными изолирующими слоями являются более перспективными для дальнейшего исследования структур сверхпроводящего спинового клапана, построенного на неклассическом эффекте близости сверхпроводник/ферромагнетик с изолирующими слоями.

Работа Камашева А.А. и Гарифьянова Н.Н. выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-72-20153). Работа Гарифуллина И.А. и Валидова А.А. выполнена в рамках темы государственного задания ФИЦ КазНЦ РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ioffe L.B., Geshkenbein V.B., Feigel'man M.V. et al. // *Nature*. 1999. V. 398. No. 6729. P. 679.
2. Рязанов В.В. // УФН. 1999. Т. 169. № 8. С. 920; Ryzanov V.V. // *Phys. Usp.* 1999. V. 42. No. 9. P. 825.
3. Ryzanov V.V., Oboznov V.A., Veretennikov A.V., Rusanov A.Yu. // *Phys. Rev. B*. 2001. V. 65. Art. No. 020501.
4. Veretennikov A.V., Ryzanov V.V., Oboznov V.A. et al. // *Physica B*. 2000. V. 284–288. P. 495.
5. Ryzanov V.V., Oboznov V.A., Rusanov A.Yu. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2001. V. 86. P. 2427.
6. Kontos T., Aprili M., Lesueur J., Grison X. // *Phys. Rev. Lett.* 2002. V. 89. Art. No. 137007.
7. Изюмов Ю.А., Прошин Ю.Н., Хусаинов М.Г. // УФН. 2002. Т. 172. № 2. С. 113; Izyumov Yu.A., Proshin Yu.N., Khusainov M.G. // *Phys. Usp.* 2002. V. 45. No. 2. P. 109.
8. Buzdin A.I. // *Rev. Mod. Phys.* 2005. V. 77. P. 935.
9. Bergeret F.S., Volkov A.F., Efetov K.B. // *Rev. Mod. Phys.* 2005. V. 77. P. 1321.
10. Efetov K.B., Garifullin I.A., Volkov A.F., Westerholt K. // In: *Magnetic heterostructures. Advances and perspectives in spinstructures and spintransport. Series Springer Tracts in Modern Physics*. V. 227. Berlin: Springer, 2007. P. 252.
11. Oh S., Youm D., Beasley M.R. // *Appl. Phys. Lett.* 1997. V. 71. No. 16. P. 2376.
12. Tagirov L.R. // *Physica C*. 1998. V. 307. P. 145.
13. Leksin P.V., Garif'yanov N.N., Garifullin I.A. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2010. V. 97. No. 10. Art. No. 102505.
14. Efetov K.B., Garifullin I.A., Volkov A.F., Westerholt K. // *Magnetic nanostructures: spin dynamics and spin transport. Springer Tracts in Modern Physics*. V. 246. Springer, 2013. P. 85.
15. Bergeret F.S., Volkov A.F., Efetov K.B. // *Phys. Rev. Lett.* 2001. V. 86. P. 4096.
16. Fominov Ya.V., Golubov A.A., Karminskaya T.Yu. et al. // *Письма в ЖЭТФ*. 2010. Т. 91. № 6. С. 329; Fominov Ya.V., Golubov A.A., Karminskaya T.Yu. et al. // *JETP Lett.* 2010. V. 91. No. 6. P. 308.
17. Leksin P.V., Garif'yanov N.N., Garifullin I.A. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 109. Art. No. 057005.
18. Zdravkov V.I., Kehrle J., Obermeier G. et al. // *Phys. Rev. B*. 2013. V. 87. Art. No. 144507.
19. Jara A.A., Safranski C., Krivorotov I.N. et al. // *Phys. Rev. B*. 2014. V. 89. Art. No. 184502.
20. Wang X.L., Di Bernardo A., Banerjee N. et al. // *Phys. Rev. B*. 2014. V. 89. Art. No. 140508(R).
21. Flokstra M.G., Cunningham T.C., Kim J. et al. // *Phys. Rev. B*. 2015. V. 91. Art. No. 060501.
22. Banerjee N., Smiet C.B., Smits R.G.J. et al. // *Nature Commun.* 2014. V. 5. Art. No. 3048.
23. Kamashev A.A., Garif'yanov N.N., Validov A.A. et al. // *Beilstein J. Nanotechnol.* 2019. V. 10. P. 1458.
24. Kamashev A.A., Garif'yanov N.N., Validov A.A. et al. // *Phys. Rev. B*. 2019. V. 100. Art. No. 134511.
25. Singh A., Voltan S., Lahabi K., Aarts J. // *Phys. Rev. X*. 2015. V. 5. Art. No. 021019.
26. Mühge Th., Garif'yanov N.N., Goryunov Yu.V. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 1996. V. 77. P. 1857.
27. Mühge Th., Westerholt K., Zabel H. et al. // *Phys. Rev. B*. 1997. V. 55. Art. No. 8945.
28. Mühge Th., Theis-Bröhl K., Westerholt K. et al. // *Phys. Rev. B*. 1998. V. 57. Art. No. 5071.

Investigation of the features of superconducting spin valve based on Fe/Nb

A. A. Kamashev^{a,*}, A. A. Validov^a, N. N. Garif'yanov^a, I. A. Garifullin^a

^a Zavoisky Physical-Technical Institute, FRC Kazan Scientific Center of the Russian Academy of Sciences, Kazan, 420029 Russia

*e-mail: kamandi@mail.ru

We studied new structures of superconducting spin valves of Fe₂/Nb/Fe₁/CoO_x and Fe₂/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe₁/CoO_x designs. The operation of these structures is built beyond the classical superconductor/ferromagnet proximity effect. The superconductor/ferromagnet interface in these structures is separated by an additional insulating layer. According to the results of our studies, the Fe₂/Al₂O₃/Nb/Al₂O₃/Fe₁/CoO_x structures are the most promising structures for further research.

УДК 537.9:537.6:53.06

СОЗДАНИЕ И ИССЛЕДОВАНИЕ ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУР НА БАЗЕ Fe/Nb

© 2023 г. А. А. Валидов¹, *, М. И. Насырова¹, Р. Р. Хабибуллин¹, И. А. Гарифуллин¹

¹Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

*E-mail: validov@kfti.knc.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Исследованы структуры Fe/Nb и Fe/Al₂O₃/Nb приготовленные на монокристаллических подложках MgO и Al₂O₃ при различных температурах подложки во время напыления. Обнаружено, что структуры, приготовленные при высоких температурах подложки (>600 K) на MgO демонстрируют наиболее стабильные, а главное воспроизводимые транспортные свойства образцов.

DOI: 10.31857/S0367676522700922, EDN: NOOMAK

ВВЕДЕНИЕ

В конце прошлого века были предложены две теоретические модели сверхпроводящего спинового клапана (ССК). Первая конструкция Ф1/Ф2/С была предложена Санжиун О и др. в работе [1]. Вторая модель Ф1/С/Ф2 была предложена позже профессором Тагировым [2]. Здесь Ф1 и Ф2 – ферромагнитные слои, а С – сверхпроводящий слой. Принцип работы обеих моделей ССК одинаков. Базовым эффектом в конструкциях ССК является эффект близости сверхпроводник/ферромагнетик (С/Ф). Принцип работы ССК основан на том, что величина обменного поля от двух Ф-слоев, действующего на куперовскую пару из С-слоя, в случае параллельной (П) ориентации намагниченностей Ф-слоев больше, чем в случае антипараллельной (АП). Это разность приводит к более низкому значению температуры перехода в сверхпроводящее состояние в случае параллельной ориентации намагниченностей Ф-слоев ($T_c^П$), чем при антипараллельной ориентации ($T_c^{АП}$). Именно такая концепция работы ССК была представлена в работах [1, 2]. Как показывают эксперименты, это утверждение верно только для классического эффекта ССК с конструктивной квантовой интерференцией парной волновой функции сверхпроводящего конденсата. В случае же обратного эффекта ССК с деструктивной квантовой интерференцией парной волновой функции сверхпроводящего кон-

денсата в структурах ССК $T_c^{АП}$ ниже, чем $T_c^П$. Данный эффект впервые был теоретически описан в работе Фомина и др. [3].

Конструкция ССК модели профессора Тагирова Ф1/С/Ф2 экспериментально исследовалась первой. В 2002 г. Гу и др. в работе [4] исследовали такую конструкцию и обнаружили величину эффекта ССК $\Delta T_c = T_c^{АП}(\alpha = 180^\circ) - T_c^П(\alpha = 0^\circ)$ (где α – угол между направлениями векторов намагниченностей ферромагнитных слоев) порядка 6 мК при ширинах сверхпроводящих переходов $\partial T_c \sim 0.1$ К. Структуры сверхпроводящего спинового клапана являются перспективными моделями для создания различных логических устройств на их базе для нужд сверхпроводящей спинтроники. Главным условием для успешной работы ССК является: $\Delta T_c > \partial T_c$, где $\Delta T_c = T_c^{АП} - T_c^П$; ∂T_c – ширина сверхпроводящего перехода. Это необходимо для того, чтобы существовала возможность полного включения/выключения сверхпроводящего тока. После работы Гу и др. [4] были исследованы различные структуры ССК (см., например, [5–8]).

В 2010 г. наша группа впервые экспериментально продемонстрировала полное переключение между нормальным и сверхпроводящим состояниями в структуре ССК Fe₁/Cu/Fe₂/In в работе [9], путем взаимного изменения направления векторов намагниченностей Ф-слоев. Таким образом, мы смогли контролировать сверхпроводящий ток в на-

ших системах. Для этой структуры были получены следующие результаты: $\Delta T_c = 19$ мК и $\partial T_c \sim 7$ мК. Наш интерес к модели ССК, предложенной Сан-жиун О и др. [1] связан с тем, что в работе [10] была косвенно продемонстрирована возможность достижения величины эффекта ССК $\Delta T_c \sim 200$ мК. Таким образом, модель $\Phi 1/\Phi 2/C$ выглядит для нас более перспективной для достижения максимальных величин эффекта ССК. После нашей работы [9] мы исследовали различные конструкции ССК с разнообразными ферромагнитными и сверхпроводящими материалами. Мы наблюдали знакопеременное осцилляционное поведение величины эффекта ССК от толщины слоя $\Phi 2$ -слоя в работе [11]. Нашей группой были получены первые экспериментальные доказательства существования дальнodelействующих триплетных компонент сверхпроводящего конденсата в структурах ССК в работе [12]. Далее наша группа занималась детальным изучением эффекта сверхпроводящего спинового клапана в различных конструкциях ССК, а также подбором материалов для достижения максимальных величин эффекта ССК [13–15]. Мы продемонстрировали гигантскую величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана ΔT_c более 0.5 К в магнитном поле 3.5 кЭ, что является рекордным значением величины эффекта ССК в этих магнитных полях для структур $\Phi 1/\Phi 2/C$ [16–18].

На сегодняшний день, область знаний, связанная с созданием и исследованием классических моделей ССК хорошо изучена. Как показывают наши результаты [16–18] и результаты других групп [19], предельные значения эффекта ССК уже достигнуты при использовании различных сплавов и элементных ферромагнетиков в структурах $\Phi 1/\Phi 2/C$. В связи с этим необходимо начинать изучение конструкций ССК с нетривиальными подходами. Одним из таких подходов, может быть, исследование структур ССК на базе сегнетоэлектрических подложек. Мы уже приступили к исследованию таких структур [20]. В этих структурах возникает возможность управлять сверхпроводящим током с помощью электрического поля, а немагнитного как это было ранее.

Здесь же мы предлагаем создавать и исследовать принципиально новые структуры сверхпроводящих спиновых клапанов. Работа новых структур построена за пределами классического эффекта близости сверхпроводник/ферромагнетик, т. е. в них будет отсутствовать прямой интерфейсный контакт между сверхпроводником и ферромагнетиком. Создание и исследование таких структур отчасти мотивировано работой [21]. В работе [21] продемонстрирована возможность достижения эффекта ССК порядка 300 мК в структурах с изо-

ляционными слоями. Однако это работа 1969 г. и далее такие структуры подробно не исследовались.

На первом этапе мы предлагаем создавать и исследовать структуры сверхпроводящего спинового клапана на базе железа (Fe) и ниобия (Nb). Во-первых, ниобий имеет широкое применение в качестве сверхпроводника в современной сверхпроводящей спинтронике, благодаря высокой температуре сверхпроводящего перехода. Во-вторых, в работах [22–24] наша группа продемонстрировала наличие “мертвой” зоны в интерфейсе Fe/Nb. Эта “мертвая” зона на границах Fe/Nb и Nb/Fe может успешно послужить в качестве изоляционных слоев на границе раздела ферромагнетик/сверхпроводник и сверхпроводник/ферромагнетик в структуре ССК. Для реализации ССК такой конструкции необходимо отладить технологию приготовления двухслойных систем Fe/Nb. В этой работе мы также отладили технологию приготовления трехслойных структур Fe/Al₂O₃/Nb, где оксид алюминия (Al₂O₃) — изоляционный слой. Как показывают наши исследования конструкции сверхпроводящего спинового клапана на базе Fe/Al₂O₃/Nb являются более перспективными для дальнейших исследований.

ОБРАЗЦЫ

Была отлажена технология приготовления двухслойных Fe/Nb и трехслойных Fe/Al₂O₃/Nb систем на монокристаллических подложках MgO и Al₂O₃. Образцы готовились при различных температурах подложек ($T_{\text{подложка}}$) в диапазоне от 300 до 700 К. Структуры были приготовлены на напылительной установке фирмы BESTEC в Казанском физико-техническом институте им. Е.К. Завойского. Образцы готовились в камере молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ) с использованием классического метода электронно-лучевого испарения в сверхвысоком вакууме $1 \cdot 10^{-9}$ мбар. Для приготовления структур были использованы сверхчистые мишени железа (Fe), алюминия (Al) и ниобия (Nb) с концентрацией примесей менее 0.01%. В структурах Fe/Al₂O₃/Nb оксид алюминия напылялся в два этапа. Сначала последовательно напылялись слои Fe и Al, после чего держатель образцов перемещался в загрузочный шлюз и выдерживался в течение 2 ч в атмосфере кислорода при давлении 100 мбар. Далее держатель снова возвращался в камеру МЛЭ для нанесения слоя Nb. Линейные размеры образцов на монокристаллических подложках составляли 3×7 мм². Скорость напыления слоев Fe и Al составляла 0.5 Å/с, скорость напыления сверхпроводящего слоя Nb составляла 1.5 Å/с. В камере МЛЭ установлено 4 различных мишени, что позволяет осуществлять напы-

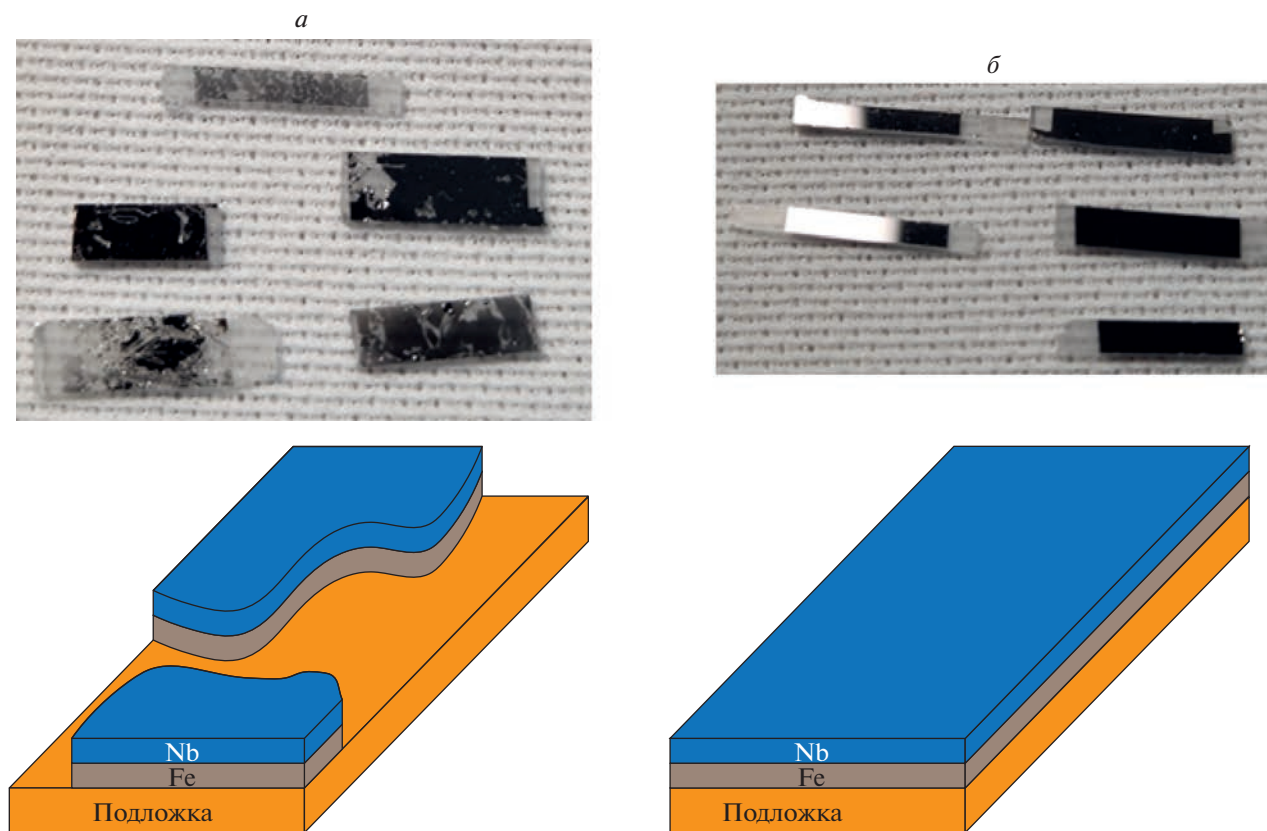


Рис. 1. Модели и фотографии исследуемых образцов: серия образцов 1, приготовленные при $T_{\text{подложка}} = 300$ К (а) и серия образцов 2, приготовленные при $T_{\text{подложка}} > 600$ К (б). Подробности о сериях образцов см. в табл. 1.

ление различных материалов в одном вакуумном цикле. Скорость осаждения контролировалась при помощи водоохлаждаемого кварцевого осциллятора, находящего непосредственно поблизости с образцами. Благодаря специальному самодельному держателю образцов существовала возможность приготовления 8 различных образцов за один вакуумный цикл. Также данный держатель позволяет варьировать температуру подложек во время приготовления. Держатель оборудован температурным датчиком и магнитными контактами для подключения к системе нагрева в сверхвысоком вакууме. Модели и фотографии образцов представлены на рис. 1. На рис. 1а представлены структуры, приготовленные при комнатной температуре подложки $T_{\text{подложка}} = 300$ К (серия образцов 1). На рис. 1б представлены структуры, приготовленные при высокой температуре подложки $T_{\text{подложка}} > 600$ К (серия образцов 2). Параметры исследуемых образцов представлены в табл. 1. Во время приготовления образцов варьировались температура подложек и толщины слоев.

Из рис. 1 видно, что структуры, приготовленные при комнатной температуре подложки, демон-

стрируют плохое качество образцов. Вероятнее всего, это связано с тем, что при $T_{\text{подложка}} = 300$ К ниобий растет островками, что приводит к срыву всей структуры образца от поверхности подложки (см. рис. 1а). Этот факт не зависит от подложки, которую мы использовали. Одинаковые некачественные образцы получались на монокристаллических подложках MgO и Al₂O₃. Про необходимость нагрева во время синтеза пленок ниобия также указано в работе [25]. При этом стоит отметить, что повышение $T_{\text{подложка}}$ до 400–500 К позволяло визуально стабилизировать образцы. Образцы выглядели идеально гладкими, как это представлено на рис. 1б, но обладали нестабильными транспортными свойствами. Это будет показано далее.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

После того, как удалось визуально стабилизировать свойства образцов путем повышения $T_{\text{подложка}}$ во время приготовления образцов, мы приступили к исследованию их транспортных свойств. Мы исследовали T_c наших систем. Мы хотели получить

Таблица 1. Параметры исследуемых образцов: серия 1 – Fe(d_{Fe})/Nb(60 нм); серия 2 – Fe(d_{Fe})/Nb (60 нм); серия 3а – Fe(10 нм)/Nb(d_{Nb}); серия 3б – Fe(10 нм)/Nb(d_{Nb}); серия 4а – Fe(10 нм)/Al₂O₃(2 нм)/Nb(d_{Nb}); серия 4б – Fe(10 нм)/Al₂O₃(2 нм)/Nb(d_{Nb}); серия 4в – Fe(10 нм)/Al₂O₃(2 нм)/Nb(d_{Nb})

Серия образцов	Номер образца	d_{Fe} , нм	d_{Nb} , нм	$T_{\text{подложка}}$, К	Тип подложки
1	1	1	60	300	MgO
	2	1.5	60	300	MgO
	3	2	60	300	MgO
	4	1	60	300	Al ₂ O ₃
	5	2	60	300	Al ₂ O ₃
2	1	1	60	700	MgO
	2	1.5	60	700	MgO
	3	2	60	700	MgO
	4	1	60	700	Al ₂ O ₃
	5	2	60	700	Al ₂ O ₃
3а	1	10	70	700	MgO
	2	10	60	700	MgO
	3	10	50	700	MgO
	4	10	45	700	MgO
	5	10	40	700	MgO
	6	10	35	700	MgO
	7	10	30	700	MgO
3б	1	10	40	700	MgO
	2	10	30	700	MgO
	3	10	25	700	MgO
	4	10	20	700	MgO
	5	10	15	700	MgO
	6	10	10	700	MgO
4а	1	10	80	400	Al ₂ O ₃
	2	10	60	400	Al ₂ O ₃
	3	10	40	400	Al ₂ O ₃
	4	10	35	400	Al ₂ O ₃
	5	10	30	400	Al ₂ O ₃
	6	10	25	400	Al ₂ O ₃
	7	10	20	400	Al ₂ O ₃
	8	10	15	400	Al ₂ O ₃
4б	1	10	80	500	Al ₂ O ₃
	2	10	60	500	Al ₂ O ₃
	3	10	40	500	Al ₂ O ₃
4в	1	10	80	700	MgO
	2	10	60	700	MgO
	3	10	40	700	MgO
	4	10	35	700	MgO
	5	10	30	700	MgO
	6	10	25	700	MgO
	7	10	20	700	MgO
	8	10	15	700	MgO
	9	10	10	700	MgO
	10	10	7	700	MgO
	11	10	5	700	MgO
	12	10	3	700	MgO

стабильные и воспроизводимые свойства наших образцов. Это было необходимо, чтобы в дальнейшем интегрировать двухслойные Fe/Nb и трехслойные Fe/Al₂O₃/Nb системы в конструкцию сверхпроводящего спинового клапана. Измерения T_c проводились путем записи сверхпроводящих переходов по изменению сопротивления при помощи стандартного 4-контактного метода на постоянном токе на установке, которая была создана на базе спектрометра ЭПРХ-диапазона фирмы Bruker. В качестве контактов здесь использовались прижимные контакты из бериллиевой бронзы. В этом случае контакты являются стационарными, т.е. отсутствует необходимость нанесения новых контактов на образец от эксперимента к эксперименту. Была проведена серия экспериментов, которая позволила определить оптимальные параметры данных контактов. Измерения сопротивления образцов до и после экспериментов, показали, что контакты устойчивы к низкотемпературным измерениям и не изменяют своего положения на образце в ходе эксперимента.

Результаты по исследованию зависимости T_c от толщины слоя Nb (d_{Nb}) для различных серий образцов, приготовленных при варьируемой $T_{\text{подложка}}$, представлены на рис. 2. На этом рисунке представлены результаты для пяти различных серий образцов: серии образцов 3а и 3б приготовлены при $T_{\text{подложка}} > 600$ К на монокристаллических подложках MgO; серии образцов 4а и 4б приготовлены при $T_{\text{подложка}}$ равной 400 и 500 К, соответственно, на монокристаллических подложках Al₂O₃; серия образцов 4в приготовлена при $T_{\text{подложка}} > 600$ К на монокристаллических подложках MgO. Согласно результатам, представленным на рис. 2, видно, что свойства серий образцов 3а и 3б хорошо воспроизводятся. В обеих сериях есть повторяющиеся образцы, которые демонстрируют близкое значение T_c (см. рис. 2). Это говорит о хорошей воспроизводимости транспортных свойств образцов этих серий. Абсолютно обратный эффект наблюдается для серий образцов 4а и 4б. Согласно рис. 2, транспортные свойства образцов не воспроизводятся. При этом стоит подчеркнуть, что характер зависимости T_c от толщины сверхпроводящего слоя нехарактерен для таких структур. Стандартное поведение зависимости T_c от толщины сверхпроводящего слоя представлено на рис. 2 для серий образцов 3а, 3б, 4в. Таким образом, стоит предположить, что структуры, приготовленные при $T_{\text{подложка}} < 600$ К на монокристаллических подложках MgO и Al₂O₃ обладают нестабильными и невоспроизводимыми транспортными свойствами. Стоит подчеркнуть, что результат, представлен-

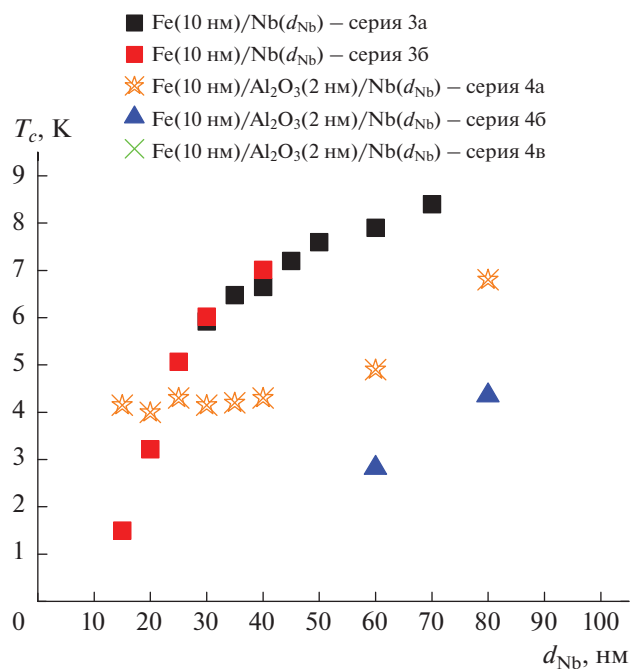


Рис. 2. Зависимость T_c от толщины Nb-слоя для пяти различных серий образцов: серии образцов 3а и 3б приготовлены при $T_{\text{подложка}} > 600$ К на монокристаллических подложках MgO; серии образцов 4а и 4б приготовлены при $T_{\text{подложка}}$ равной 400 и 500 К, соответственно, на монокристаллических подложках Al₂O₃; серия образцов 4в приготовлена при $T_{\text{подложка}} > 600$ К на монокристаллических подложках MgO. Подробности о сериях образцов см. в табл. 1.

ный на рис. 2 для серии образцов 4в, также косвенно подтверждается результатами работы [25].

Для оценки качества приготовленных образцов при $T_{\text{подложка}} > 600$ К на монокристаллических подложках MgO, а, именно, пленок ниобия в этих структурах, мы провели дополнительные измерения транспортных свойств. Мы исследовали зависимость остаточного сопротивления ($RRR = R(300\text{ К})/R(10\text{ К})$) от толщины слоя Nb для серии образцов 3б. Результаты этих исследований представлены на рис. 3. Как видно, из рис. 3, значение RRR линейно зависит от толщины слоя Nb. Это стандартное поведение зависимости остаточного сопротивления от толщины сверхпроводящей пленки. Как правило это связано с тем, что с уменьшением толщины сверхпроводящей пленки, качество пленки ухудшается, и примесный вклад в сопротивление пленки возрастает. Зависимость на рис. 3 демонстрирует высокое значение $RRR = 6$ для образцов с толщиной пленок $d_{Nb} = 40$ нм. Это говорит о высоком качестве приготовленной сверхпроводящей пленки. В случае с пленками ниобия получение высоких значений RRR тяжело достижимо, это связано с тем, что

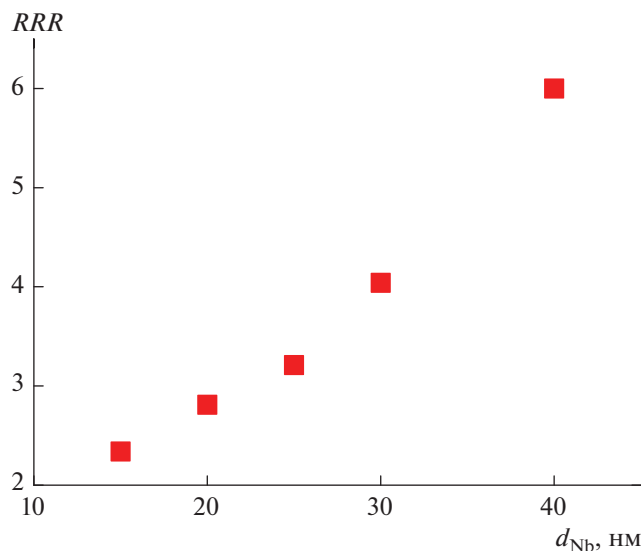


Рис. 3. Зависимость остаточного сопротивления ($RRR = R(300\text{ K})/R(10\text{ K})$) от толщины слоя Nb для серии образцов 3б.

ниобий хороший гетер. Мы делаем акцент именно на этой толщине d_{Nb} , потому что согласно результатам, представленным на рис. 2, эта толщина является близкой к рабочей толщине для структур сверхпроводящего спинового клапана на базе двухслойных систем Fe/Nb. Таким образом, результат на рис. 3, также подтверждает необходимость приготовления двухслойных Fe/Nb и трехслойных Fe/Al₂O₃/Nb систем при $T_{\text{подложка}} > 600\text{ K}$, так как это позволяет достичь высоких значений RRR пленок ниобия вблизи рабочих толщин структур ССК.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследованы двухслойные Fe/Nb и трехслойные Fe/Al₂O₃/Nb системы, приготовленные при различных температурах монокристаллических подложек MgO и Al₂O₃. Эти системы в дальнейшем планируется интегрировать в систему сверхпроводящего спинового клапана, работа которого будет построена за пределами классического эффекта близости сверхпроводник/ферромагнетик. Согласно результатам наших исследований, двухслойные Fe/Nb и трехслойные Fe/Al₂O₃/Nb системы, приготовленные при высоких температурах подложки (>600 K) на MgO демонстрируют наиболее стабильные, а главное воспроизводимые транспортные свойства образцов. Таким образом, структуры, приготовленные при высоких температурах подложки (>600 K) на MgO, являются наиболее перспективными для их интеграции в структуру сверхпроводящего спинового клапана.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 22-22-00916).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Youm S., Oh D., Beasley M.R. // Appl. Phys. Lett. 1997. V. 71. No. 16. P. 2376.
2. Tagirov L.R. // Physica C. 1998. V. 307. P. 145.
3. Fominov Ya.V., Golubov A.A., Karminskaya T.Yu. et al. // Письма в ЖЭТФ. 2010. Т. 91. С. 329; Fominov Ya.V., Golubov A.A., Karminskaya T.Yu. et al. // JETP Lett. 2010. V. 91. No. 6. P. 329.
4. Gu J.Y., You C.-Y., Jiang J.S. et al. // Phys. Rev. Lett. 2002. V. 89. Art. No. 267001.
5. Gu Yu., Halász G.B., Robinson J.W.A., Blamire M.G. // Phys. Rev. Lett. 2015. V. 115. Art. No. 067201.
6. Garifullin I.A., Leksin P.V., Garifyanov N.N. et al. // J. Magn. Magn. Mater. 2015. V. 373. P. 18.
7. Linder J., Robinson J.W.A. // Nature Phys. 2015. V. 11. P. 307.
8. Blamire M.G., Robinson J.W.A. // J. Phys. Cond. Matter 2014. V. 26. Art. No. 453201.
9. Leksin P.V., Garifyanov N.N., Garifullin I.A. et al. // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 97. Art. No. 102505.
10. Westerholt K., Sprungmann D., Zabel H. et al. // Phys. Rev. Lett. 2005. V. 95. Art. No. 097003.
11. Leksin P.V., Garifyanov N.N., Garifullin I.A. et al. // Phys. Rev. Lett. 2011. V. 106. Art. No. 067005.
12. Leksin P.V., Garifyanov N.N., Garifullin I.A. et al. // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 109. Art. No. 057005.
13. Leksin P.V., Garifyanov N.N., Kamashev A.A. et al. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. Art. No. 214508.
14. Leksin P.V., Garifyanov N.N., Garifullin I.A. et al. // Phys. Rev. B. 2016. V. 93. Art. No. 100502(R).
15. Leksin P.V., Kamashev A.A., Schumann J. et al. // Nano Res. 2016. V. 9. P. 1005.
16. Kamashev A.A., Garifyanov N.N., Validov A.A. et al. // Beilstein J. Nanotechnol. 2019. V. 10. P. 1458.
17. Kamashev A.A., Garifyanov N.N., Validov A.A. et al. // Письма в ЖЭТФ. 2019. Т. 110. № 5. С. 325; Kamashev A.A., Garifyanov N.N., Validov A.A. et al. // JETP Lett. 2019. V. 110. P. 342.
18. Kamashev A.A., Garifyanov N.N., Validov A.A. et al. // Phys. Rev. B. 2019. V. 100. Art. No. 134511.
19. Singh A., Voltan S., Lahabi K., Aarts J. // Phys. Rev. X. 2015. V. 5. Art. No. 021019.
20. Kamashev A.A., Leontyev A.V., Garifullin I.A. et al. // Ferroelectrics. 2022. V. 592. No. 1. P. 123.
21. Deutscher G., Meunie F. // Phys. Rev. Lett. 1969. V. 22. P. 395.
22. Mühge Th., Garifyanov N.N., Goryunov Yu.V. et al. // Phys. Rev. Lett. 1996. V. 77. P. 1857.
23. Mühge Th., Westerholt K., Zabel H. et al. // Phys. Rev. B. 1997. V. 55. Art. No. 8945.
24. Mühge Th., Theis-Bröhl K., Westerholt K. et al. // Phys. Rev. B. 1998. V. 57. Art. No. 5071.
25. Янилкин И.В., Гумаров А.И., Рогов А.М. и др. // ЖТФ. 2021. Т. 91. № 2. С. 275; Yanilkin I.V., Gumarov A.I., Rogov A.M. et al. // Tech. Phys. 2021. V. 66. No. 2. P. 263.

Creation and investigation of thin-film heterostructures based on Fe/Nb**A. A. Validov^{a, *}, M. I. Nasyrova^a, R. R. Khabibullin^a, I. A. Garifullin^a**^a *Zavoisky Physical-Technical Institute, FRC Kazan Scientific Center of the Russian Academy Sciences, Kazan, 420029 Russia*^{*}*e-mail: validov@kfti.knc.ru*

Fe/Nb-based thin-film heterostructures prepared under various conditions are studied. Here, Fe/Nb and Fe/Al₂O₃/Nb structures prepared on MgO and Al₂O₃ single-crystal substrates at various substrate temperatures during deposition were studied. According to the results of our studies, the structures prepared at high substrate temperatures (>600 K) on MgO demonstrate the most stable and, most importantly, reproducible transport properties of the samples.

УДК 537.6:538.9

КОНТРОЛЬ ЗА ВЕКТОРОМ НАМАГНИЧЕННОСТИ ФЕРРОМАГНИТНОГО СЛОЯ В ДВУХСЛОЙНЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУРАХ ФЕРРОМАГНЕТИК/СЕГНЕТОЭЛЕКТРИК

© 2023 г. А. А. Камашев¹ *, А. В. Леонтьев¹, И. А. Гарифуллин¹, Р. Ф. Мамин¹

¹Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского — обособленное структурное подразделение
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

*E-mail: kamandi@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Исследованы двухслойные гетероструктуры ферромагнетик/сегнетоэлектрик, в которых в качестве ферромагнитного слоя использовался кобальт, а в качестве сегнетоэлектрической подложки ниобат лития срезом 41°Y-cut. Показано, что при приложении электрического поля от 10 до 50 В к сегнетоэлектрической подложке ниобата лития регистрируется изменения направления вектора намагниченности ферромагнитного слоя.

DOI: 10.31857/S0367676522700934, EDN: NOPGDT

ВВЕДЕНИЕ

Исследования взаимного влияния сверхпроводимости и ферромагнетизма проводятся с середины прошлого века. Эти два явления антагонистичны друг другу. Противоположность этих явлений, заключается в том, что ферромагнетизм предполагает параллельную ориентацию спинов, а сверхпроводимость — антипараллельную, т.к. спины электронов куперовской пары противоположно направлены. Изначально взаимодействие этих явлений исследовалось в интерметаллических соединениях и сплавах. Эта область исследований остается актуальной и до сих пор вызывает большой интерес (см., например, [1, 2] и обзор [3]). В связи с технологическим прогрессом в приготовлении высококачественных тонкопленочных слоистых металлических структур (см., например, обзор [4]), направление исследований было смещено в сторону искусственно созданных многослойных гетероструктур (см., например, обзоры [5–10]). Интерес к структурам, состоящим из ферромагнитных и сверхпроводящих слоев, связан с тем, что в них сверхпроводимость (С) и ферромагнетизм (Ф) могут быть пространственно разнесены. Эффекты, которые наблюдаются в таких структурах, получили название эффекта близости сверхпроводник/ферромагнетик (С/Ф). Эффект близости заключается в следующем, если привести в контакт два материала с различными свойствами, то вблизи границы раздела этих материалов их свойства спутываются. В случае, ко-

гда два материала не ограничены в пространстве, свойства такого образца определяются свойствами каждого из этих материалов в отдельности. При достаточно малых толщинах слоев их свойства подвергаются модификации. Именно этот эффект взаимного изменения свойств слоев, находящихся в контакте, и называют эффектом близости. Если эти слои являются ферромагнетиком и сверхпроводником, то это и есть эффект близости С/Ф.

В конце 1990-х годов были предложены две теоретические модели сверхпроводящего спинового клапана (ССК), основанных на эффекте близости сверхпроводник/ферромагнетик. Первая модель Ф1/Ф2/С (где Ф1 и Ф2 — ферромагнитные слои, а С — сверхпроводящий слой) была предложена Санжиун О и др. [11]. Другая модель Ф1/С/Ф2 была предсказана Тагировым [12]. Принцип работы обеих моделей одинаков. Данный принцип основан на том, что величина обменного поля от двух Ф-слоев, действующего на куперовские пары из С-слоя, в случае параллельной (П) ориентации намагниченностей Ф-слоев больше, чем в случае антипараллельной ориентации (АП). Эта разница приводит к более низкому значению температуры перехода в сверхпроводящее состояние в случае параллельной ориентации намагниченностей Ф-слоев ($T_c^П$), чем при антипараллельной ориентации ($T_c^{АП}$). Главным условием для возможности контроля за сверхпро-

водящим током в структурах ССК является: $\Delta T_c > \partial T_c$, где $\Delta T_c = T_c^{\text{АП}} - T_c^{\text{П}}$ – эффект сверхпроводящего спинового клапана; ∂T_c – ширина сверхпроводящего перехода.

В 2010 г. наша группа впервые продемонстрировала возможность полного переключения сверхпроводящего тока в структуре Fe1/Cu/Fe2/In [13]. Нами также были получены прямые доказательства существования дальнедействующих триплетных компонент (ДТК) сверхпроводящего конденсата в структурах сверхпроводящего спинового клапана модели $\Phi 1/\Phi 2/\text{C}$ [14]. Мы продемонстрировали гигантскую величину эффекта сверхпроводящего спинового клапана порядка 0.5 К в магнитном поле 3.5 кЭ, что является рекордом эффекта ССК в этих магнитных полях для структур модели $\Phi 1/\Phi 2/\text{C}$ [15, 16].

На сегодняшний день управление сверхпроводящим током под действием внешнего магнитного поля в структурах ССК достигло максимальных значений по эффективности. Результаты нашей группы [15, 16] и других групп [17] показывают, что предельные значения эффекта ССК уже достигнуты при использовании большого разнообразия сплавов и элементных ферромагнетиков в структурах $\Phi 1/\Phi 2/\text{C}$. В связи с этим необходимо исследовать новые гетероструктуры с нестандартными подходами. Одним из таких подходов может быть исследование структур ССК на базе сегнетоэлектрических подложек. Это позволит управлять сверхпроводящим током с помощью электрического поля в структурах ССК, а не магнитного, как это было раньше.

В общем случае для реализации модели ССК на базе сегнетоэлектрической подложки необходимо решить основную и главную задачу. Необходимо реализовать и отладить механизм контроля за направлением вектора намагниченности ферромагнитного слоя в двухслойной гетероструктуре ферромагнетик/сегнетоэлектрик за счет магнитоупругого эффекта. Магнитоупругий эффект в этой системе возникает вследствие деформаций сегнетоэлектрической подложки, обусловленных обратным пьезоэлектрическим эффектом при приложении внешнего электрического поля к сегнетоэлектрической подложке. Деформации в сегнетоэлектрической подложке вызывают напряжения в ферромагнитном слое из-за контакта ферромагнетика и сегнетоэлектрика, то есть за счет эффекта близости ферромагнетик/сегнетоэлектрик. Это, в свою очередь, проявляется в появлении дополнительной магнитной анизотропии, которая при определенном построении системы может привести к изменению направления вектора намагниченности ферромагнитного слоя.

В данной работе были исследованы двухслойные гетероструктуры ферромагнетик/сегнетоэлектрик, где в качестве ферромагнитного слоя

использовался кобальт, а в качестве сегнетоэлектрической подложки ниобат лития среза 41°Y-cut . В предыдущей нашей работе [18] в качестве ферромагнитного материала использовалось железо, а в качестве сегнетоэлектрической подложки ниобат лития среза Z-cut . В данной работе мы покажем, что при приложении электрического поля от 10 до 50 В к сегнетоэлектрической подложке ниобата лития надежно регистрируется изменения направления вектора намагниченности ферромагнитного слоя методом эффекта Керра.

ОБРАЗЦЫ

Здесь были приготовлены двухслойные гетероструктуры ферромагнетик/сегнетоэлектрик. В качестве ферромагнитного материала использовался кобальт (Co). В качестве сегнетоэлектрических подложек были использованы нелинейные кристаллы ниобата лития (LiNbO_3). Использовались подложки среза 41°Y-cut с хорошо отполированной поверхностью, то есть с минимальной шероховатостью. Толщина ферромагнитных пленок варьировалась от 5 до 10 нм.

Была использована сверхчистая мишень ферромагнитного материала кобальта с чистотой выше значения 4N, что говорит о концентрации примеси менее 0.01%. Важным обстоятельством при получении ферромагнитных пленок была необходимость получения пленок с малой структурной анизотропией. Для этого мы добивались того, чтобы пленки получались поликристаллическими. В этом случае, анизотропия будет только наведенная за счет магнитоупругого эффекта вследствие деформаций, наведенных подложкой. Но и такую анизотропию мы пытались минимизировать. Для этого напыление пленок происходило при температурах наиболее близких к комнатной. И так как мы управляем деформациями сегнетоэлектрической подложки, прикладывая электрическое поле в различных направлениях, данная анизотропия преодолевается. Поликристалличность ферромагнитных пленок достигалась высокой скоростью осаждения ферромагнитного материала на поверхность сегнетоэлектрической подложки при близкой к комнатной температуре. Скорость напыления ферромагнитных пленок составляла $0.5 \text{ \AA/s}$. Напыление происходило в камере с молекулярно-лучевой эпитаксией. В данной камере установлено 4 различных мишени, что позволяет осуществлять напыление различных материалов в одном вакуумном цикле. Скорость осаждения контролировалась при помощи водоохлаждаемого кварцевого осциллятора, который непосредственно расположен вблизи подложки. Для того, чтобы существовала возможность напыления 8 различных образцов за один вакуумный цикл, был использован специальный держатель образцов. Путем вращения

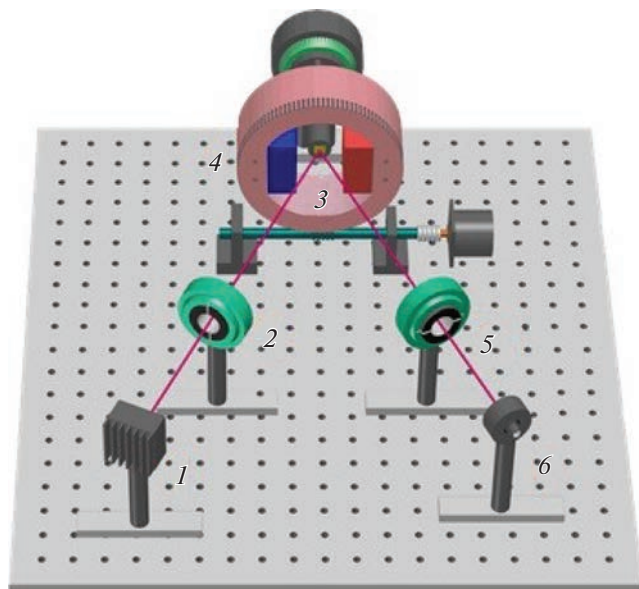


Рис. 1. Схема экспериментальной установки регистрации магнитооптического эффекта Керра: 1 – полупроводниковый лазерный диод; 2, 5 – скрещенные поляризаторы (призмы Глана), 3 – образец; 4 – магнит; 6 – фотодетектор (фотодиод).

данного держателя возможно переключение между различными образцами в одном вакуумном цикле. Напыление образцов в ходе одного вакуумного цикла позволяет исключить роль влияния условий приготовления на свойства образцов. Линейные размеры подложек составляли порядка $5\text{ мм} \times 7\text{ мм}$. Толщина подложек 0.5 мм .

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Магнитная характеристика образцов проводилась при помощи экспериментальной установки

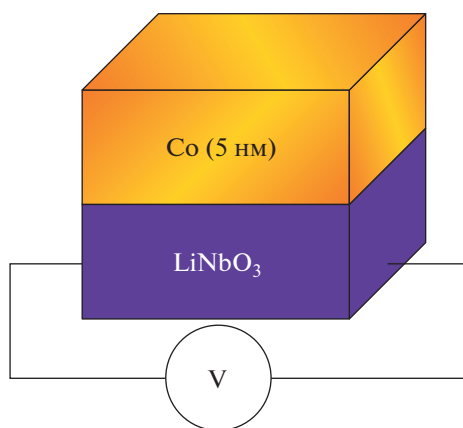


Рис. 2. Модель двухслойной гетероструктуры ферромагнетик/сегнетоэлектрик с демонстрацией подключения электродов к боковым граням сегнетоэлектрической подложки.

регистрации магнитооптического эффекта Керра, представленной на рис. 1. Фактически мы отслеживали интенсивность света, прошедшего через поляризатор, отраженного от образца и прошедшего через анализатор, а не реальную ориентацию вектора намагниченности ферромагнитного слоя. Величина регистрируемого фотодетектором сигнала зависит от угла поворота плоскости поляризации света, отраженного от образца, что позволяет анализировать поведение намагниченности ферромагнитного слоя на поверхности образца.

Нами была построена карта напряжений при различном расположении электродов и при различных напряжениях внешнего электрического поля. Был осуществлен поиск оптимального дизайна расположения электродов. Согласно результатам моделирования, для приготавливаемых образцов наиболее эффективным расположением электродов является на боковых гранях сегнетоэлектрической подложки (см. рис. 2).

Наиболее интересный результат удалось получить для образца $\text{Co}(5\text{ нм})/\text{LiNbO}_3$ (см. рис. 3). На рис. 3 в точках 1, 2, 3 прикладывалось электрическое поле порядка 30 В к сегнетоэлектрической подложке по схеме, представленной на рис. 2. В точках 4, 5, 6 электрическое поле отключалось. В точках 1, 2, 3 после включения электрического поля наблюдалось резкое изменение интенсивности света, что может свидетельствовать об изменении направления вектора намагниченности ферромагнитного слоя. Этот факт подтверждается и тем, что в точках 4, 5, 6 наблюдается обратное изменение интенсивности света при выключении

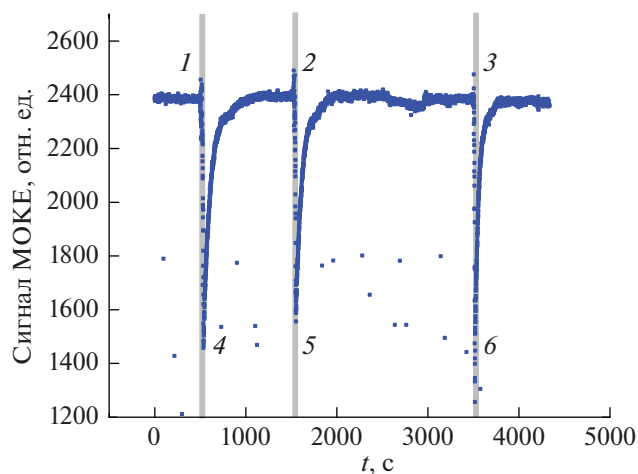


Рис. 3. Зависимость от времени интенсивности света, прошедшего через поляризатор для образца $\text{Co}(5\text{ нм})/\text{LiNbO}_3$, где использовался ниобат лития среза 41°Y-cut . Подробное описание рисунка смотрите в тексте. В точках 1, 2, 3 прикладывалось электрическое поле порядка 30 В ; в точках 4, 5, 6 прекращалось воздействие электрического поля.

электрического поля, что свидетельствует о перемагничивании ферромагнитной пленки.

В дальнейших наших исследованиях мы планируем использовать подложки ниобата лития среза 131°Y-cut и подложки PMN-PT, и, возможно, другие ферромагнитные материалы для нанесения плёнок. Для надежной регистрации направления вектора намагниченности, в дальнейшем мы будем разделять выходной пучок на два луча с вертикальной и горизонтальной поляризацией и по соотношению интенсивностей определять реальный угол поворота поляризации света, а, следовательно, и реальное изменение ориентации вектора намагниченности ферромагнитного слоя.

Таким образом, наши результаты продемонстрировали, что электрического поля порядка 30 В достаточно для регистрации изменения направления вектора намагниченности в структурах $\text{Co}(5\text{ нм})/\text{LiNbO}_3$, где использовался ниобат лития среза 41°Y-cut .

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследованы двухслойные гетероструктуры ферромагнетик/сегнетоэлектрик, где в качестве ферромагнитного слоя использовался кобальт, а в качестве сегнетоэлектрической подложки ниобат лития среза 41°Y-cut . Согласно нашим исследованиям, прикладывание электрического поля порядка 30 В к сегнетоэлектрической подложке ниобата лития с расположением электродов на боковых гранях в структурах $\text{Co}(5\text{ нм})/\text{LiNbO}_3$, где использовался ниобат лития среза 41°Y-cut , достаточно для регистрации изменения направления вектора намагниченности слоя кобальта.

Исследования выполнены при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-72-10178).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Fischer O., Peter M. // In: Magnetism. V. 5. N.Y.: Academic Press Inc., 1973.
2. Rehmann S., Herrmannsdorfer T. // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 78. No. 6. P. 1122.
3. Bulaevskii L.N., Buzdin A.I., Kulić M.L. et al. // Adv. Phys. 1985. V. 34. No. 2. P. 175.
4. Jin B.Y., Ketterson J.B. // Adv. Phys. 1989. V. 38. No. 4. P. 189.
5. Chien C.L., Jiang J.S., Xiao J.Q. et al. // J. Appl. Phys. 1997. V. 81. No. 8. P. 5358.
6. Chien C.L., Reich D.H. // J. Magn. Magn. Mater. 1999. V. 200. P. 83.
7. Garifullin I.A. // J. Magn. Magn. Mater. 2002. V. 240. P. 571.
8. Изюмов Ю.А., Прошин Ю.Н., Хусаинов М.Г. // УФН. 2002. Т. 172. № 2. С. 113; Izumov Yu.A., Proshin Yu.N., Khusainov M.G. // Phys. Usp. 2002. V. 45. No. 2. P. 109.
9. Golubov A.A., Kupriyanov M.Y., Il'ichev E. // Rev. Mod. Phys. 2004. V. 76. No. 2. P. 411.
10. Buzdin A.I. // Rev. Mod. Phys. 2005. V. 77. No. 3. P. 935.
11. Oh S., Youm D., Beasley M.R. // Appl. Phys. Lett. 1997. V. 71. No. 16. P. 2376.
12. Tagirov L.R. // Physica C. 1998. V. 307. P. 145.
13. Leksin P.V., Garif'yanov N.N., Garifullin I.A. et al. // Appl. Phys. Lett. 2010. V. 97. No. 10. Art. No. 102505.
14. Leksin P.V., Garif'yanov N.N., Garifullin I.A. et al. // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 109. Art. No. 057005.
15. Kamashev A.A., Garif'yanov N.N., Validov A.A. et al. // Beilstein J. Nanotechnol. 2019. V. 10. P. 1458.
16. Kamashev A.A., Garif'yanov N.N., Validov A.A. et al. // Phys. Rev. B. 2019. V. 100. Art. No. 134511.
17. Singh A., Voltan S., Lahabi K., Aarts J. // Phys. Rev. X. 2015. V. 5. Art. No. 021019.
18. Kamashev A.A., Leontyev A.V., Garifullin I.A. et al. // Ferroelectrics. 2022. V. 592. No. 1. P. 123.

Control of the direction of magnetization of a ferromagnetic layer in two-layer heterostructure ferromagnet/ferroelectric

A. A. Kamashev^{a,*}, A. V. Leontyev^a, I. A. Garifullin^a, R. F. Mamin^a

^a Zavoisky Physical-Technical Institute, FRC Kazan Scientific Center of the Russian Academy of Sciences, Kazan, 420029 Russia

*e-mail: kamandi@mail.ru

We studied two-layer ferromagnet/ferroelectric heterostructures, where iron, cobalt, and nickel were used as ferromagnetic layers, and lithium niobate was used as a ferroelectric substrate. According to our studies, applying an electric field from 10 to 50 V to a ferroelectric lithium niobate substrate is sufficient to register a change in the direction of the magnetization vector of the ferromagnetic layer.

УДК 537.312.52

ФОТОСОПРОТИВЛЕНИЕ ПЛЕНОЧНОЙ ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{MgO}$

© 2023 г. А. О. Чибирев¹, *, А. В. Леонтьев¹, Т. М. Салихов¹, Р. Ф. Мамин¹

¹Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

*E-mail: chibirev12@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

При исследовании гетероструктуры $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ на подложке MgO обнаружен эффект отрицательной фотопроводимости во время однородного освещения образца монохроматическим зеленым светом со стороны сегнетоэлектрической пленки гетероструктуры. Предложено объяснение эффекта фотосопротивления частичным экранированием поляризации сегнетоэлектрика фотостимулированными носителями заряда.

DOI: 10.31857/S0367676522700946, EDN: NOUHGG

ВВЕДЕНИЕ

Новые функциональные свойства материалов могут возникать при создании сложной гетероструктуры, когда, при воздействии на одну из частей гетероструктуры, изменяются характеристики всей гетероструктуры. Такие возможности просматриваются в гетероструктурах с двумя непроводящими оксидами, которые обладают уникальными транспортными свойствами с высокой проводимостью в области интерфейса. Двумерный электронный газ (2DEG) высокой подвижности был обнаружен впервые на интерфейсе между двумя непроводящими оксидами LaAlO_3 (LAO) и SrTiO_3 (STO) [1]. Исследования таких гетероструктур на основе двух непроводящих оксидов интенсивно проводились в течение последних двух десятилетий [1–5]. Было установлено, что металлическая проводимость возникает в слоях STO на интерфейсе $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ (LAO/STO), когда количество слоев LAO становится больше трех [2, 3]. Было показано, что гетероструктуры LAO/STO также обладают ферромагнитными свойствами [2], и наблюдается переход в сверхпроводящее состояние при температурах ниже 0.3 K [4]. Позже, при исследовании гетероструктуры $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{La}_2\text{CuO}_4$, было обнаружено сверхпроводящее поведение на интерфейсе с температурой перехода в сверхпроводящее состояние около 30 K [6]. Также 2DEG был обнаружен в других немагнитных диэлектриках. Было установлено, что возникновение 2DEG происходит из-за полярной природы одного из компонентов

гетероструктуры. Состояния с высокой проводимостью также наблюдаются на границе раздела диэлектрических оксидов, один из которых является сегнетоэлектриком [6–8]. Использование сегнетоэлектрических оксидов в таких гетероструктурах дает возможность переключать направление поляризации сегнетоэлектрика и таким образом управлять проводящими свойствами гетероструктуры. Ранее нами было обнаружено высокопроводящее состояние на интерфейсе в гетероструктуре $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$ на основе сегнетоэлектрика и диэлектрика [7]. В данной работе мы исследовали влияние освещения на сопротивление гетероструктуры $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$, состоящей из пленок соответствующих составов, нанесенных на подложку MgO, и влияние освещения на проводимость на интерфейсе.

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Исследованы влияние освещения на сопротивление пленочной структуры $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ (BST/LMO/BST) с толщиной подслоев $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ 453 и 383 нм, соответственно, и с толщиной подслоя LaMnO_3 , равной 553 нм. Гетероструктуры получались при последовательном нанесении пленок сегнетоэлектрика $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ (BSTO) и манганита LaMnO_3 (LMO) на подложку MgO. Эпитаксиальные пленки BSTO и LMO наносились последовательно при распылении стехиометрических мишеней соответствующих составов методом высокочастотного магнетронного рас-

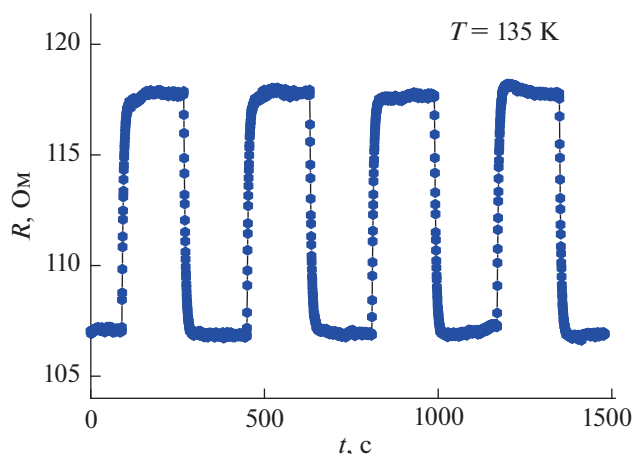


Рис. 1. Динамика изменения электросопротивления образца BSTO/LMO/BSTO после включения и выключения освещения зеленым светом при 135 К.

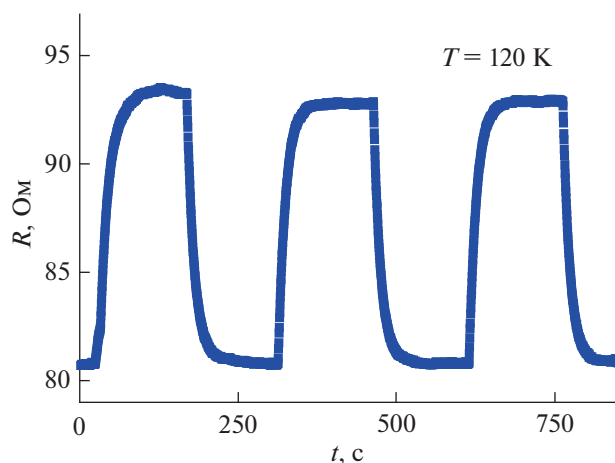


Рис. 2. Динамика изменения электросопротивления образца BSTO/LMO/BSTO после включения и выключения освещения зеленым светом при 120 К.

пыления при 650°C на подложку MgO толщиной 1 мм в ориентации (100). Были исследованы проводящие свойства гетероструктуры BST/LMO/BST и влияние освещения различного спектрального состава на проводящие свойства вдоль интерфейса. Сопротивление вдоль границы раздела измерялось четырехзондовым методом в отсутствие и при освещении зеленым светом со стороны сегнетоэлектрической пленки. Электрические контакты были образованы с помощью токопроводящей серебряной пасты на боковой поверхности образцов таким образом, чтобы они находились на интерфейсе гетероструктур, при этом расстояние между измерительными электродами было разным в разных экспериментах, т. к. контакты создавались непосредственно перед циклом измерений. Образец помещался в криостат охлаждения Janis ST-100, в котором образец находился в контакте с медным пальцем, с которым контактировала медь-константановая термопара. Температура образца стабилизировалась контроллером LakeShore 325 и поддерживалась с точностью ± 0.1 К. Облучение проводили несфокусированным лазерным светом, с пятном диаметром 4 мм, и энергией $\sim 6\text{--}20$ мкДж с использованием зеленого (514 нм) света. Длительность лазерных импульсов составляла 200 фс, частота следования импульсов 3, 1.5 и 0.75 кГц. Свет подавали с использованием кварцевых конденсоров.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Зависимость сопротивления от температуры резко изменяется ниже 175 К, что можно связать с переходом интерфейса в высокопроводящее состояние, так как такое поведение очень похоже на то, что наблюдалось в гетероструктуре $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$ [7], когда LMO было в ви-

де монокристалла, а не в виде пленки. Поэтому мы провели исследования воздействия света на сопротивление гетероструктуры BSTO/LMO/BSTO при температурах ниже 175 К. Результаты исследования изменения электросопротивления образца BSTO/LMO/BSTO при температурах 135 и 120 К при различных циклах включения/выключения зеленого света, длиной волны 514 нм, и с различной частотой следования импульсов представлены на рис. 1, 2 и 3.

Динамика изменения электросопротивления образца BSTO/LMO/BSTO для тока, текущего через интерфейс, при температуре $T = 135$ К при включении и выключении освещения зеленым светом (длина волны 514 нм) представлена на рис. 1. Эксперимент начинается при выключенном освещении. Видно, что сопротивление образца при освещении возрастает примерно на 9.8%.

На рис. 2 представлена динамика изменения электросопротивления образца BSTO/LMO/BSTO для тока, текущего через интерфейс, при температуре $T = 120$ К при включении и выключении освещения зеленым светом (длина волны 514 нм). Эксперимент также начинался при выключенном освещении. В данном случае сопротивление образца при освещении возрастает уже примерно на 14.8%. При этом характерное время скорости изменения сопротивления для обеих температур составляет около 30–50 с.

Результаты исследования электросопротивления образца BSTO/LMO/BSTO при температуре 135 К после включения и выключения освещения зеленым светом на длине волны 514 нм и с различной частотой следования импульсов 3, 1.5 и 0.75 кГц представлены на рис. 3. На рис. 3 не видно каких-либо заметных изменений при изменении частоты следования импульсов.

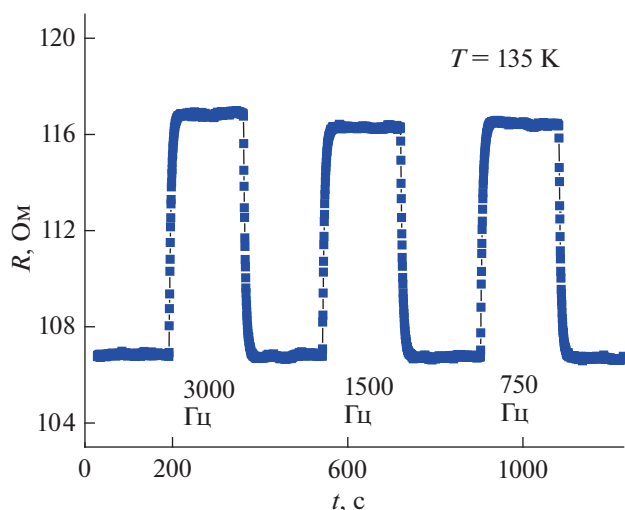


Рис. 3. Динамика изменения электросопротивления образца BSTO/LMO/BSTO при температуре 135 К после включения и выключения освещения зеленым светом и с различной частотой следования импульсов — частоты отмечены на рисунке.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Обнаруженный нами эффект отрицательной фотопроводимости во время однородного освещения светом различного спектрального состава со стороны сегнетоэлектрической пленки гетероструктуры нельзя объяснить нагревом образца. При облучении лазером установившаяся температура приповерхностного объема может расти. Однако при освещении со стороны пленки поглощение происходит по всей толщине сегнетоэлектрической пленки. При этом, по нашим оценкам, изменение температуры даже на поверхности сегнетоэлектрической пленки составляет только около 0.1 К. Если учесть, что проводимость осуществляется в области интерфейса, то эффект нагрева в основной области в нашем случае совершенно отсутствует, так как возможный нагрев на 0.1 К происходит на поверхности сегнетоэлектрической пленки. Практическое отсутствие нагрева обусловлено тем, что мы использовали несфокусированный лазерный луч, и поэтому плотность мощности была сравнительно малой.

Практическое отсутствие изменений на рис. 3 в динамике фотосопротивления, как его максимального значения, так и скорости нарастания/спада при использовании лазерного освещения с различной частотой следования импульсов, также свидетельствует о том, что нагрев не происходит. Если бы в результате нагрева образец не успевал бы полностью остыть до прихода следующего импульса, то температура росла бы с каждым

импульсом. Тогда изменение интервала между импульсами должно было бы значительно влиять на скорость нагрева. Однако на рис. 3 не наблюдается изменений при изменении частоты следования импульсов, что свидетельствует об отсутствии нагрева.

Поскольку наблюдаются довольно медленные релаксационные процессы, мы предполагаем, что такая зарядовая динамика связана с релаксацией в сегнетоэлектрической пленке, потому что релаксационные процессы в металлической части образца должны были бы происходить намного быстрее. Исходя из этого мы предлагаем следующее объяснение наблюдаемого явления отрицательной фотопроводимости. При освещении носители тока, генерируемые в сегнетоэлектрике, будут экранировать поляризацию внутри сегнетоэлектрической пленки. Как следствие, это “эффективное” уменьшение объемной поляризации в пленке сегнетоэлектрика приводит к уменьшению плотности носителей заряда в высокопроводящей области интерфейса, что и приводит к возрастанию проводимости.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследовано фотостимулированное изменение сопротивления гетероструктуры $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ на подложке MgO. Обнаружен эффект отрицательной фотопроводимости во время однородного освещения образца монохроматическим зеленым светом со стороны сегнетоэлектрической пленки гетероструктуры. Характерное время скорости изменения сопротивления при включении и выключении света составляет около 30–50 с. Эффект отрицательной фотопроводимости объясняется частичным экранированием поляризации сегнетоэлектрика фотостимулированными носителями заряда.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-12-00179).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ohtomo A., Hwang H.Y. // *Nature*. 2004. V. 427. P. 423.
2. Thiel S., Hammerl G., Schmehl A. et al. // *Science*. 2006. V. 313. P. 1942.
3. Niranjana M.K., Wang Y., Jaswal S.S., Tsybal E.Y. // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 103. Art. No. 016804.
4. Reyren N., Thiel S., Caviglia A.D. et al. // *Science*. 2007. V. 317. P. 1196.
5. Brinkman A., Huijben M., Van Zalk M. et al. // *Nature Mater.* 2007. V. 6. P. 493.

6. *Pavlov D.P., Zagidullin R.R., Mukhortov V.M. et al. // Phys. Rev. Lett. 2019. V. 122. Art. No. 237001.*
7. *Павлов Д.П., Пианзина И.И., Мухортов В.М. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2017. Т. 106. № 7. С. 440; Pavlov D.P.,*
- Piyanzina I.I., Mukhortov V.M. et al. // JETP Lett. 2017. V. 106. No. 7. P. 460.*
8. *Kabanov V.V., Piyanzina I.I., Lysogorskiy Yu.V. et al. // Mater. Res. Express. 2020. V. 7. Art. No. 055020.*

Photoresistance of a film heterostructure $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{MgO}$

A. O. Chibirev^a, A. V. Leontyev^a, *, T. M. Salikhov^a, R. F. Mamin^a

^a *Zavoisky Physical-Technical Institute — Subdivision of the Federal Research Center
“Kazan Scientific Center of Russian Academy of Sciences”, Kazan, 420029 Russia*

*e-mail: chibirev12@mail.ru

An effect of illumination by ultrashort laser pulsed light at 514 nm on electrical resistance of $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$ heterostructure has been observed. In the temperature range below 175 K, illumination causes a reversible increase in the resistance. A time constant linked to the rate of resistance changes is about 30–50 s.

УДК 537.312.6

ПРОВОДИМОСТЬ ПЛЕНОЧНОЙ ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ

$\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$

© 2023 г. А. О. Чибирев¹, *, А. В. Леонтьев¹, М. И. Банников¹, Р. Ф. Мамин¹

¹Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

*E-mail: chibirev12@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Исследовано температурное поведение электрического сопротивления пленочных гетероструктур $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ на подложке MgO. Показано, что сопротивление значительно уменьшается с температурой ниже температуры максимума около 170 К. Такое поведение можно связать с переходом интерфейса в высокопроводящее состояние, так как подобное поведение очень похоже на то, что наблюдалось в гетероструктуре $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$ на подложке монокристалла LaMnO_3 .

DOI: 10.31857/S0367676522700958, EDN: NOXLYN

ВВЕДЕНИЕ

Новые уникальные свойства функциональных материалов можно получить за счет эффектов, связанных с воздействием на одну из частей сложной гетероструктуры. Примером таких новых структур служат оксидные гетероструктуры с двумя непроводящими оксидами, обладающие уникальными транспортными свойствами в области интерфейса. Впервые двумерный электронный газ (2DEG) высокой подвижности на интерфейсе между двумя непроводящими оксидами LaAlO_3 (LAO) и SrTiO_3 (STO) был обнаружен Охтомо и Вангом в 2004 г. [1]. После этого к исследованиям гетероинтерфейсов на основе двух непроводящих оксидов было приковано особое внимание [1–7], т.к. это открывает новые возможности миниатюризации размеров электронных устройств. Установлено, что квазиметаллическая фаза образуется в слоях STO на границе $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ (LAO/STO), когда количество слоев LAO больше трех [2, 3]. Также было показано, что гетероструктура LAO/STO обладает ферромагнитными свойствами [3] и переходит в сверхпроводящее состояние при температурах ниже 0.3 К [4]. При исследовании гетероструктуры $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{La}_2\text{CuO}_4$ было обнаружено сверхпроводящее поведение на интерфейсе с температурой перехода в сверхпроводящее состояние около 30 К [8]. Позже 2DEG был обнаружен в других немагнитных диэлектриках. Установлено, что создание 2DEG происходит из-за полярной

природы одного из компонентов гетероструктуры. Поэтому 2DEG также образуется на границе раздела диэлектрических оксидов, один из которых является сегнетоэлектриком [8–10]. Основным преимуществом использования сегнетоэлектриков является возможность переключать направление поляризации с направления, перпендикулярного границе раздела, на направление вдоль границы и тем самым управлять свойствами электронной системы. Ранее нами было обнаружено высокопроводящее состояние на интерфейсе в гетероструктуре на основе сегнетоэлектрика и диэлектрика $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$, когда в качестве подложки использовался монокристалл LaMnO_3 [9]. В настоящей работе мы исследовали проводящие свойства гетероструктуры в пленочном исполнении $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ на подложке MgO.

ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Гетероструктуры получены при последовательном нанесении пленок сегнетоэлектрика $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ (BSTO) и манганита LaMnO_3 (LMO) на подложку MgO. Эпитаксиальные пленки BSTO и LMO наносили последовательно при распылении стехиометрических мишеней соответствующих составов методом высокочастотного магнетронного распыления при 650°C на подложку MgO толщиной 1 мм в ориентации (100). Была исследована температур-

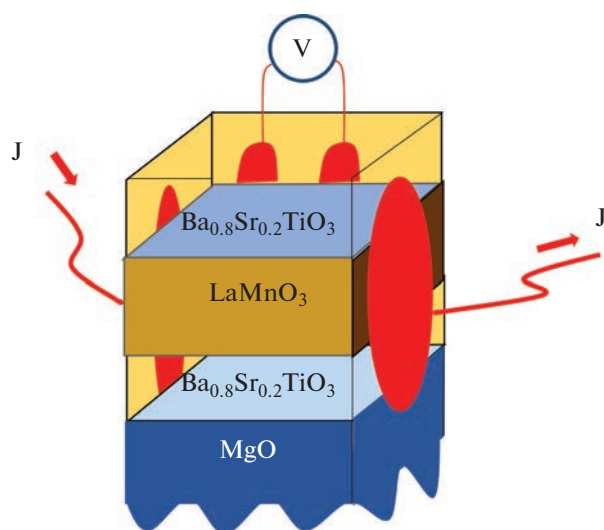


Рис. 1. Схематическое изображения гетероструктуры и расположение контактов при четырехконтактном измерении сопротивления.

ная зависимость сопротивления пленочной структуры $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ (BST/LMO/BST) с различной толщиной подслоев. Для состава BST/LMO/BST с толщиной подслоев $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ 453 и 383 нм, соответственно, и с толщиной подслоя LaMnO_3 равной 553 нм были получены наиболее интересные результаты, которые и представлены в этой работе. Исследование других конфигураций гетероструктур продолжается. Сопротивление вдоль границы раздела измерялось четырехзондовым методом. Электрические контакты были нанесены с помощью токопроводящей серебряной пасты на боковой поверхности образцов таким образом, чтобы они находились на интерфейсе гетероструктур, как показано на рис. 1. Образец помещался в криостат охлаждения Janis ST-100 в котором образец находился в контакте с медным пальцем. Температура образца стабилизировалась контроллером LakeShore 325, измерялась с помощью медь-константановой термопары и поддерживалась с точностью ± 0.1 К.

РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1 представлено схематическое изображение гетероструктуры BST/LMO/BST на подложке MgO с электродами. На рисунке отмечено, что расположение всех контактов, и через которые подается ток и через которые измеряется падение напряжения на гетероструктуре, при четырехконтактном измерении сопротивления сделано так, чтобы они перекрывали все 3 интерфейса

На рис. 2 представлена температурная зависимость электросопротивления гетероструктуры

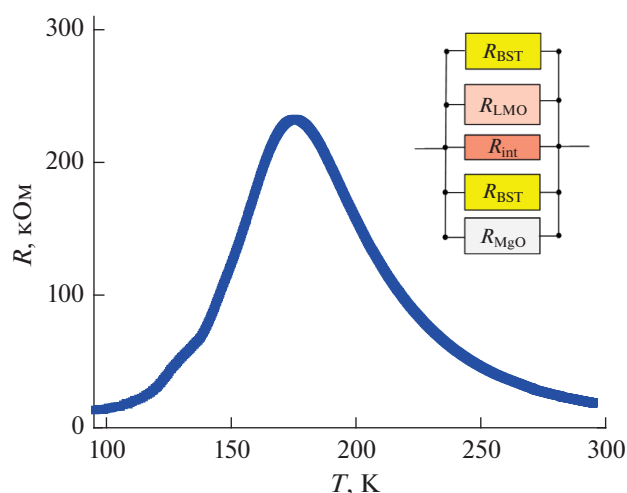


Рис. 2. Температурная зависимость сопротивления $R(T)$ гетероструктуры $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ на подложке MgO. На вставке показана блок-схема сопротивления гетероструктуры.

BST/LMO/BST. При температурах выше 175 К температурная зависимость $R(T)$ электросопротивления исследуемой гетероструктуры имеет активационный вид, характерный для полупроводников. При температуре около 175 К сопротивление достигает максимального значения и в дальнейшем переходит, ниже этой температуры, к режиму, когда сопротивление уменьшается с понижением температуры, что характерно для образцов с металлическим характером проводимости. Оценка энергии активации высокотемпературной части $R(T)$ дает значение порядка 0.3 эВ.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

При исследовании гетероструктуры BST/LMO/BST на подложке MgO с при температуре ниже 175 К температурная зависимость сопротивления показывает квазиметаллический характер поведения, когда сопротивление гетероструктуры растет при повышении температуры. При этом выше температуры 175 К электросопротивление $R(T)$ подчиняется активационному закону с энергией активации 0.3 эВ, что соответствует энергии активации LaMnO_3 . Поэтому предлагаем следующее описание поведения сопротивления гетероструктуры BST/LMO/BST, которая соответствует блок-схеме, изображенной на вставке на рис. 2. У нас имеется подложка MgO, три слоя пленок и области интерфейса. Областей интерфейса в данном случае две, но мы изобразили их в виде одного сопротивления, потому что либо они идентичны, либо нижний интерфейс “выключается” в случае, если нижняя пленка BSTO становится по каким-либо причи-

нам полидоменной. Пленки BSTO и подложка MgO диэлектрики, и поэтому ток течет по пленке LMO либо по области интерфейса, где, по видимому, наблюдается квазиметаллическое поведение сопротивления за счет образования 2DEG состояния. При высоких температурах сопротивление пленки LMO достаточно маленькое, ток течет в основном через эту пленку, и поэтому мы наблюдаем активационное поведение сопротивления с энергией активации как у монокристаллического LaMnO_3 . С понижением температуры сопротивление пленки LMO сильно возрастает, и при низких температурах ток течет в основном через область интерфейса. В результате, в этой области температур, наблюдается квазиметаллическое поведение сопротивления. В этом случае наблюдается не чисто металлическое поведение сопротивления, потому что возможно изменение свойств этой интерфейсной области с температурой — могут изменяться как концентрация носителей в этой области, так и характерная толщина области концентрации носителей.

В предыдущих работах было показано существование областей вблизи интерфейса $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3$, на монокристалле LaMnO_3 , демонстрирующих аномальное поведение $R(T)$, и что это было связано с реализацией сценария, когда поляризация сегнетоэлектрика на границе раздела экранировалась за счет перестройки электронной структуры в LMO [9, 10]. Вследствие чего в слое LMO вблизи границы раздела возникала повышенная концентрация носителей заряда высокой подвижности. Мы полагаем, что подобный сценарий реализуется и в этой исследуемой гетероструктуре. Отличительной чертой данной гетероструктуры является наличие двух похожих интерфейсов, которые могут вести себя независимо. Это обстоятельство требует дополнительного исследования в последующих работах.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследовано температурное поведение сопротивления гетероструктуры $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{MgO}$ с толщиной слоя LaMnO_3 равной 553 нм. В этой гетероструктуре при температуре выше 175 К температурная зависимость электросопротивления $R(T)$ демонстрирует активационное поведение. При понижении температуры происходит переход к режиму с квазиметаллическим характером поведения, когда сопротивление гетероструктуры растет при повышении температуры. Аномальная проводимость при низких температурах при этом связывается с перестройкой электронной подсистемы вблизи области интерфейса, приводящей к увеличению концентрации свободных носителей высокой подвижности.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-12-00179).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ohtomo A., Hwang H.Y. // *Nature*. 2004. V. 427. P. 423.
2. Niranjana M.K., Wang Y., Jaswal S.S., Tsybal E.Y. // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 103. Art. No. 016804.
3. Thiel S., Hammerl G., Schmehl A. et al. // *Science*. 2006. V. 313. P. 1942.
4. Reyren N., Thiel S., Cavaglia A.D. et al. // *Science*. 2007. V. 317. P. 1196.
5. Brinkman A., Huijben M., Van Zalk M. et al. // *Nature Mater.* 2007. V. 6. P. 493.
6. Kalabukhov A., Gunnarsson R., Borjesson J. et al. // *Phys. Rev. B*. 2007. V. 75. Art. No. 121404.
7. Moetakef P., Cain T.A., Ouellette D.G. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2011. V. 99. Art. No. 232116.
8. Pavlov D.P., Zagidullin R.R., Mukhortov V.M. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2019. V. 122. Art. No. 237001.
9. Павлов Д.П., Пилянина И.И., Мухомтов В.М. и др. // *Письма в ЖЭТФ*. 2017. Т. 106. № 7. С. 440; Pavlov D.P., Pilyanzina I.I., Mukhortov V.M. et al. // *JETP Lett.* 2017. V. 106. No. 7. P. 460.
10. Kabanov V.V., Pilyanzina I.I., Lysogorskiy Yu.V. et al. // *Mater. Res. Express*. 2020. V. 7. Art. No. 055020.

Conductivity of a film heterostructure $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$

A. O. Chibirev^a*, A. V. Leontyev^a, M. I. Bannikov^a, R. F. Mamin^a

^a Zavoisky Physical-Technical Institute — Subdivision of the Federal Research Center “Kazan Scientific Center of Russian Academy of Sciences”, Kazan, 420029 Russia

*e-mail: chibirev12@mail.ru

The electrical resistance of $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3/\text{LaMnO}_3/\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ film heterostructures has been studied. It is shown that the resistance decreases significantly with a temperature below the maximum temperature of about 170 K. Thus, for such heterostructures, the effect of quasi-two-dimensional conductivity was discovered, but only at certain layer thicknesses.

УДК 536.539.2:548:549

СВОЙСТВА ПЕРКОЛЯЦИОННЫХ КАНАЛОВ В ПЛАНАРНЫХ МЕМРИСТИВНЫХ СТРУКТУРАХ НА ОСНОВЕ ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНОК ОКСИДНЫХ ПЕРОВСКИТНЫХ СОЕДИНЕНИЙ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ И $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$

© 2023 г. А. Н. Россоленко¹, Н. А. Тулина^{1, *}, И. М. Шмытько¹, А. А. Иванов²,
А. В. Зотов³, И. Ю. Борисенко³, В. В. Сироткин³, В. А. Тулин³

¹Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

“Институт физики твердого тела Российской академии наук”, Черноголовка, Россия

²Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования

“Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ”, Москва, Россия

³Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

“Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов Российской академии наук”,
Черноголовка, Россия

*E-mail: tulina@issp.ac.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Обоснован выбор базовых материалов и изучены их функциональные свойства для разработки структуры и выяснения механизма резистивных переключений. Синтезированы мезоскопические гетероструктуры на основе эпитаксиальных ориентированных (001) пленок высокотемпературного сверхпроводника $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ и легированного манганита $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$, изучены свойства каналов перколяции структур на основе этих соединений. Изучены эффекты “самоадаптирующегося электроформирования” в микроконтактных гетероструктурах на основе эпитаксиальных пленок манганита. Численные расчеты по модели критического электрического поля показали, что “самоэлектроформирование” происходит в сильных электрических полях и в зоне контакта образуется щелевая структура. Данная структура обеспечивает воспроизводимость резистивных переключений.

DOI: 10.31857/S036767652270096X, EDN: NOXZNR

ВВЕДЕНИЕ

Современная технология, мемристоры, обладают уникальным свойством нелинейной резистивной памяти ReRAM и могут служить аналоговыми системами обработки информации с нейроподобной структурой, а также датчиком электрофизиологической активности с возможностью одновременного накопления и энергонезависимого хранения [1, 2]. Одна из главных задач в разработке электронных структур на основе мемристоров лежит в области материаловедения. Проблема мемристоров, с точки зрения определения механизма, управляющего мемристивными свойствами различных структур, “много векторная” и определяется прежде всего функциональными свойствами материалов, из которых сделана структура. Для ReRAM материал с переключаемым сопротивлением, работающий в качестве носителя информации, является наиболее важной частью для производительности памяти.

Среди многочисленных материалов, исследованных и применяемых в качестве основы для мемристоров это простые и сложные оксиды [3]. В этой работе рассматриваются последние исследования этой возникающей памяти с точки зрения материаловедения в мемристивных структурах на основе перовскитных оксидов переходных металлов (см. [4] и ссылки там) и подчеркнута важная роль вычислительного материаловедения в исследованиях ReRAM [5]. Внедрения системы численных вычислений и многомасштабного моделирования позволило построить физическую модель возникновения перколяционных путей и обратимого переключения в исследованных мемристорах. На примере исследования мемристивных структур на основе $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) и $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$ (LSMO) [6–8] мы покажем, что именно дефицит кислорода в основе формирования и анализа работы мемристивных структур на основе легированных оксидных перовскитов.

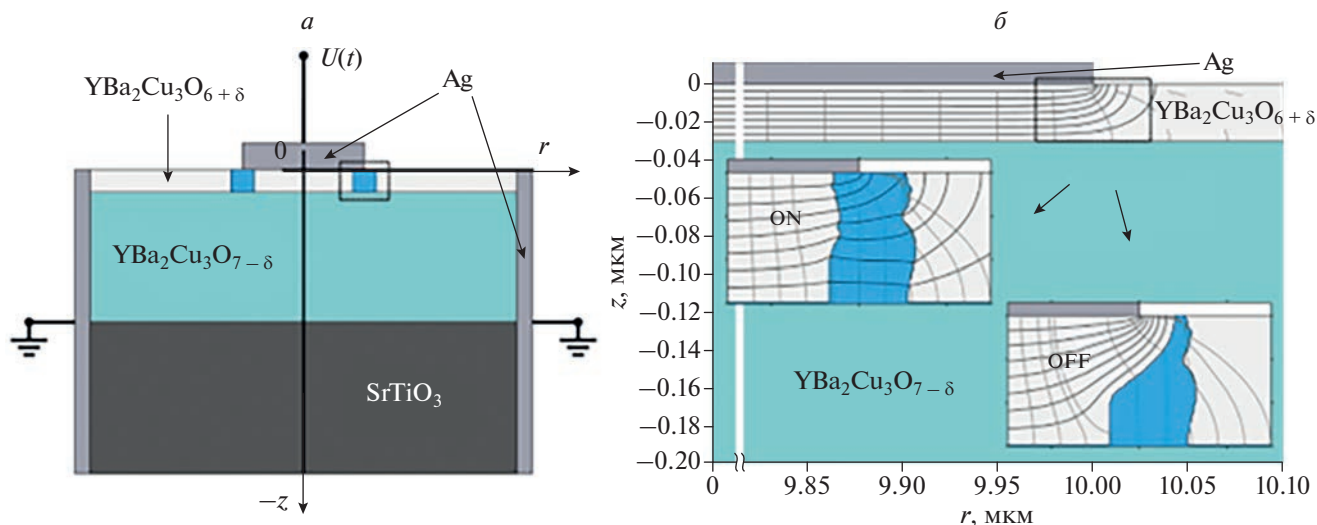


Рис. 1. Схема структуры Ag/YBa₂Cu₃O_{6+δ}/YBa₂Cu₃O_{7-δ}/SrTiO₃, область, выделенная пунктирным прямоугольником, является активной частью структуры (а). Пример расчета распределения линий тока и потенциала при формировании метастабильных состояний включения (On) и выключения (Off) (б). На рисунках показаны линии тока и равноудаленные эквипотенциальные линии электрического поля. Вставка показывает вид канала в низкорезистивном (On) и высокорезистивном (Off) состояниях.

Три основных положения легли в основу физической модели работы мемристора на основе перовскитных систем:

- а) изменение резистивных свойств материала от металлических до изолятора при отклонении от кислородной стехиометрии
- б) деградация поверхностных свойств по кислороду на размере порядка 10 нм.
- в) пространственная неоднородность электрического поля в планарных выше обсуждаемых структурах металл–изолятор–металл (МИМ).

ФУНКЦИОНАЛЬНЫЕ СВОЙСТВА ПОЛУЧЕННЫХ СТРУКТУР

Существующие теоретические представления связывают большинство свойств легированных перовскитных соединений типа высокотемпературных сверхпроводников (ВТСП) и легированных манганитов (ЛМ) степенью легирования щелочноземельным атомом [9, 10] и кислородной нестехиометрией кислорода, при этом наблюдается структура типа металл–изолятор [11, 12].

ПЛАНАРНАЯ ГЕОМЕТРИЯ

На поверхности монокристаллов и эпитаксиальных пленок исследованных структур, ориентированных (001), в результате деградации по кислороду в резервуарах заряда возникает диэлектрический слой, на глубине порядка 10 нм. Это фундаментальное свойство позволяет использовать МИМ гетеропереходы на основе ок-

сидных соединений в создании ReRAM мемристоров в планарной геометрии, когда один электрод значительно меньше другого, например микроконтакты Шарвина [13, 14], в которых общее сопротивление структуры R_0 определяется параметрами материала: ρ_0, ρ_k, d

$$R_0 \approx \left(\frac{\rho_0}{2d} \right) \left\{ \left(\frac{\rho_{sk}}{\rho_i} \right) - 1 \right\} \left(\frac{z_k}{d} \right), \quad (1)$$

где d — диаметр верхнего электрода, z_k — толщина переходного слоя.

При $d < z_k$, и $\rho_{sk} > \rho_i$ только поверхность дает вклад в общее сопротивление контакта и определяет метастабильные состояния, которые можно использовать в электронных устройствах как электронную память. На рис. 1 проиллюстрированы вышесказанные утверждения на примере расчета растекания тока и формирования перколяционных каналов в мемристивных структурах планарного типа на основе эпитаксиальной пленки YBCO [8]. Температура и электрическое поле существенно меняют характер проводимости разных областей гетеропереходов из-за проявления нескольких механизмов: влияния электрического поля на проводимость каждой фракции и явления перегрева.

Следующие графики иллюстрируют результаты экспериментов.

ВЛИЯНИЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ

Интерфейс является деградированной по кислороду частью кристалла перовскитных соедине-

ний типа ВТСП и легированных манганитов. Наиболее вероятно, что деградацию интерфейса определяют кислородные вакансии. Влияние деградации по кислороду на свойства YBCO исследовалось методами Оже спектроскопии и было установлено, что толщина этого слоя равна примерно 30 Å. Из подробных структурных исследований влияния нестехиометрии кислорода на критическую температуру сверхпроводящего перехода T_c , хорошо известна связь T_c и параметра δ [15]. Сверхпроводимость исчезает при орторомбическом-тетрагональном переходе, который происходит около $\delta = 0.65$. В результате поверхностный слой имеет пониженное по сравнению с объемом число носителей, то есть находится на стороне изолятора [9]. И это есть макроскопическое фазовое расслоение по терминологии работы [16]. Достижение критической напряженности электрического поля при развертке напряжения на структуре является началом двух процессов: а) на краю контакта начинает формироваться (либо распадаться при обратной полярности электрического поля) домен с повышенной плотностью носителей (диэлектрический пробой). б) параллельно, при изменении конфигурации электрического поля идет медленный процесс электродиффузии подвижных ионов, формируются туннельные каналы на барьере. От того насколько долго пройдет этот, будет зависеть отношение $R_{\text{off}}/R_{\text{on}}$, которое характеризует память мемристинной структуры (рис. 1 и 2).

ПЕРЕГРЕВ

Существование резистивного пика в точке Кюри и разный характер транспорта в ферромагнитной и парамагнитной области в 9-планарных структурах на основе манганитов приводит к тому, что уже небольшая поверхностная неоднородность с отличной от объема резистивностью, включенная в проводящий канал, будет приводить к локальному перегреву в этой области и переключению ВАХ с линейной зависимости тока от напряжения на нелинейную как показано на рис. 3. Особенность (отмеченная стрелкой) проявляется на ВАХ мемристоров с верхним электродом большого диаметра (>0.1 см). Численные расчеты показали, что такие особенности обусловлены эффектами перегрева.

ЩЕЛЕВЫЕ СТРУКТУРЫ

Использование микроконтактов с механическим микроманипулятором позволило значительно уменьшить диаметр металлического электрода и, как следует из соотношения (1), увеличить влияние поверхностных кислород дефицитных слоев в сопротивление структуры. На рис. 4 показаны ВАХ в щелевых структурах на основе LSMO и мо-

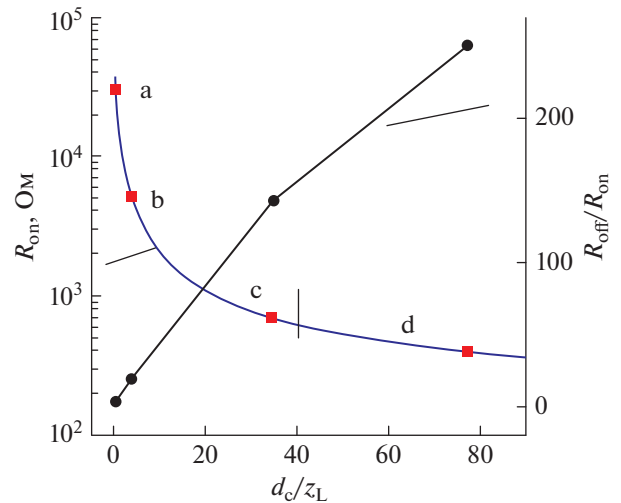


Рис. 2. Зависимость сопротивления перколяционного канала R_{on} от толщины проводящего канала (d_c) в пленочных гетероструктурах на основе YBCO [9]. R_{off} , R_{on} — сопротивления метастабильных состояний, d_c — толщина проводящего канала, $z_L = 30$ нм, толщина диэлектрической части.

дельной расчет картины растекания тока в таких структурах. Как видно из рисунков, по мере увеличения напряжения формирование низкорезистивного состояния (перколяционного канала) происходит при более высоких напряжениях сканирования и воспроизводится. Таким образом, происходит электроформовка и самонастраивающееся переключение. Из этих исследований следует выделить несколько нетривиальных результатов. Во-первых, высокоомная ветвь ВАХ (выключенное состояние, ветвь 3–1) имеет диодный характер. Во-вторых, эффект переключения напрямую зависит от максимального тока, прошедшего через структуру, и, в-третьих, при высоких напряжениях при сканировании происходит непрерывное изменение резистивного состояния: “самоадаптирующегося электроформирования”.

Для описания наблюдаемого эффекта “самоадаптирующегося электроформирования” была разработана модифицированная модель критического поля (оригинальная модель была ранее описана в [5–8]). Предполагается, что при переходе к высоким напряжениям, приложенным к структуре, во время предварительной электроформирования происходит утолщение дефектного слоя в зоне контакта (см. рис. 4). Важно отметить, что состояния On и Off воспроизводятся при моделировании дальнейших циклических переключений

Следует подчеркнуть, что в приведенной выше модели важен выбор критического электрического поля E_{th} . Предполагается, что наиболее вероятным механизмом образования перколяционных каналов является пробой диэлектрика в областях, где электрическое поле достигает критического

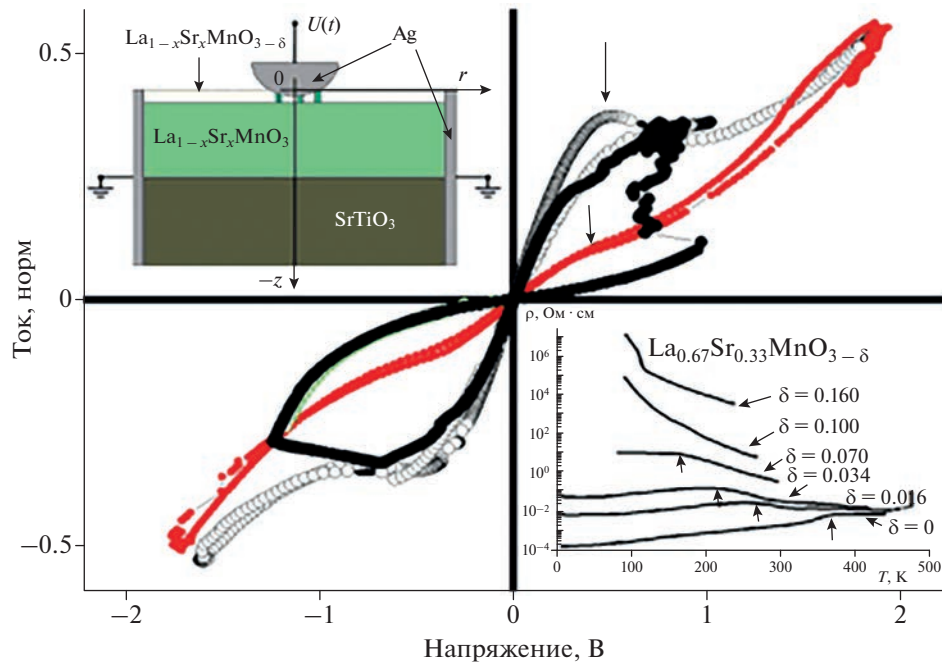


Рис. 3. Пример ВАХ мемристивной структуры $\text{Ag}/\text{LSMO}_\delta/\text{LSMO}/\text{SrTO}$ с резистивными переключениями. $d = 0.5$ см — полые кружки, $d = 0.1$ см — красные точки, $d = 0.01$ см — черные точки. Особенность (отмеченная стрелкой) проявляется на ВАХ мемристоров с верхним электродом большого диаметра (>0.1 см). Численные расчеты показали, что такие особенности обусловлены эффектами перегрева. В левом верхнем углу схема планарной гетероструктуры с верхним электродом (распыленная пленка серебра либо механический микроконтакт). В правом нижнем углу температурная зависимость сопротивления кислород дефицитного манганита с разными кислородными индексами. Стрелками обозначена температура Кюри ферромагнитного перехода.

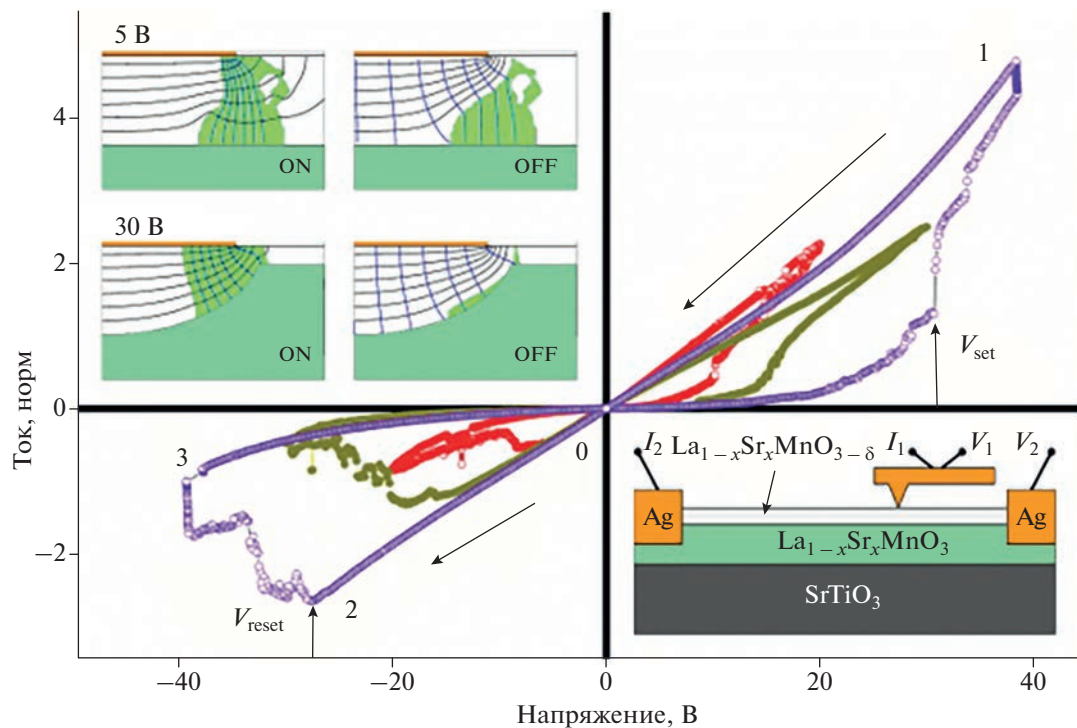


Рис. 4. Пример ВАХ мемристоров на основе шелевых структур пленок LSMO с микроконтактом механического типа в непрерывной развертке. В верхнем левом углу показан результат моделирования. Показано начальное состояние структуры (фон), а также состояния On и Off. Канал перколяции окрашен в светло-зеленый цвет. Серые кривые — это эквипотенциали, синие — линии тока.

порогового значения E_{th} . Для полупроводников существует закон, связывающий E_{th} со значением диэлектрической щели Δ_g [17]:

$$E_{th} = 173(\Delta_g)^{2.5}. \quad (2)$$

На основе этого соотношения было выбрано $E_{th} = 3 \cdot 10^6$ В/см. Кроме того, численные расчеты показывают, что в случае “самоадаптирующегося электроформирования” проводящий канал формируется не только на краю контакта, но и глубоко под контактом. Это приводит к образованию структуры зазора, которая сохранилась после предыдущего переключения с On на Off состояния (рис. 4).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ и численный расчет полученных результатов показал, что в планарных мемристивных структурах на основе монокристаллов и пленок LSMO особенности ВАХ определяются как перегревами, так и формированием перколяционного канала в кислород дефицитной области интерфейса Ag/LSMO₈. Высокомные структуры на основе эпитаксиальных пленок LSMO₈ демонстрируют процессы формирования проводящего канала в области только интерфейса Ag/LSMO₈. Исследования переключений по протоколам выявило, что: высокорезистивное состояние определяет исходное состояние, переключения носят пороговый характер, низкорезистивное состояние формируется через домены тока. Наблюдены эффекты самоадаптирующегося электроформирования в микроконтактных гетероструктурах на основе эпитаксиальных пленок манганита. Численные расчеты показали, что самоэлектроформирование происходит в сильных электрических полях и в зоне контакта образуется щелевая структура. Такая структура с зазором показывает стабильные воспроизводимые переключения.

Работа выполнена в рамках темы государственных заданий Института Физики твердого тела РАН, Института проблем микроэлектроники и особочистых материалов РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Li Y., Wang Z., Midya R. et al. // J. Phys. D. 2018. V. 51. Art. No. 503002.
2. Wang C., Wu H., Gao B., Zhang et al. // Microelectron. Engin. 2018. V. 187–188. P. 121.
3. Perez-Tomas A. // Adv. Mater. Interfaces. 2019. V. 6. Art. No. 1970096.
4. Tulina N.A., Ivanov A.A. // J. Supercond. Nov. Magn. 2020. V. 33. P. 2279.
5. Тулина Н.А., Сироткин В.В., Борисенко И.Ю., Иванов А.А. // Изв. РАН. Сер. физ. 2013. Т. 77. № 3. С. 297; Tulina N.A., Sirotkin V.V., Borisenko I.Yu., Ivanov A.A. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2013. V. 77. No. 3. P. 265.
6. Tulina N.A., Rossolenko A.N., Shmytko I.M. et al. // J. Supercond. Sci. Technol. 2019. V. 32. P. 5003.
7. Тулина Н.А., Россоленко А.Н., Шмытько И.М. и др. // Наноиндустрия. 2019. Т. 89. С. 237.
8. Tulina N.A., Borisenko I.Yu., Shmytko I.M. et al. // J. Supercond. Nov. Magn. 2020. V. 33. P. 3695.
9. Pickett W. E., Singh D.J., Krakauer H., Cohen R.E. // Science. 1992. V. 255. No. 5040. P. 46.
10. Dagotto E., Hotta N., Moreo A. // Phys. Reports. 2001. V. 344. P. 1.
11. Байков Ю.М., Никулин Е.И., Мелех Б.Т., Егоров В.М. // ФТТ. 2004. Т. 46. № 11. С. 2018.
12. Chaika A.N., Ionov A.M., Tulina N.A. et al. // J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 2005. V. 148. P. 101.
13. Yanson I.K. // Low Temp. Phys. 1983. V. 6. P. 676.
14. Sano Y. // J. Appl. Phys. 1985. V. 58. P. 2651.
15. Jorgensen J. // Phys. Rev. B. 1990. V. 41. P. 1863.
16. Dagotto E. // Rev. Mod. Phys. 1994. V. 66. P. 763.
17. Hudgins J. // J. Electron. Mater. 2003. V. 33. P. 471.

Properties of percolation channels in planar memristive structures base on epitaxial films of oxide perovskite compounds $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$

A. N. Rossolenko^a, N. A. Tulina^{a, *}, I. M. Shmytko^a, A. A. Ivanov^b, A. V. Zotov^c,
I. Y. Borisenko^c, V. V. Sirotkin^c, V. A. Tulin^c

^a Osipyan Institute of Solid-State Physics of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia

^b National Research Nuclear University Moscow Engineering Physics Institute (MEPhI), Moscow, 115409 Russia

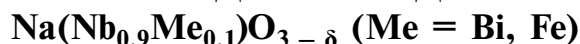
^c Institute of Microelectronics Technology and High Purity Materials of the Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, 142432 Russia

*e-mail: tulina@issp.ac.ru

The choice of base materials and the use of their functional properties in the development of the structure and elucidation of the mechanism of resistive switching has been analyzed. Mesoscopic heterostructures based on epitaxial oriented (001) films of high-temperature superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and doped manganite $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$, were obtained, and the properties of percolation channels of structures based on these compounds were studied. The effects of “self-adapting electroforming” in microcontact heterostructures based on epitaxial films of manganite are observed. Numerical calculations using the critical electric field model have shown that “self-electroforming” occurs in strong electric fields and a gap structure is formed in the contact zone. This structure provides reproducibility of resistive switching.

УДК 538.956

ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ В ТВЕРДЫХ РАСТВОРАХ



© 2023 г. Н. М. Оспельников¹, Е. В. Барабанова^{1, *}

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования “Тверской государственный университет”, физико-технический факультет, Тверь, Россия

*E-mail: pechenkin_kat@mail.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Изучена температурная зависимость диэлектрической проницаемости и электропроводности керамики ниобата натрия, легированной железом или висмутом в широком интервале частот внешнего поля. Определены фазовые переходы и их характеристики в данных твердых растворах, а также механизмы проводимости.

DOI: 10.31857/S0367676522700971, EDN: NOXZRF

ВВЕДЕНИЕ

Одной из актуальных задач современного материаловедения является поиск новых функциональных материалов с сегнетоэлектрическими свойствами. В связи с этим ниобат натрия NaNbO_3 вызывает не угасающий интерес на протяжении не одного десятилетия. Это обусловлено как высокой степенью полиморфизма данного соединения [1], так и его способностью образовывать различные твердые растворы [2–6]. При этом используется как изовалентное, так и гетеровалентное замещение ионов натрия и/или ниобия. Кроме того, данный материал и его твердые растворы проявляют как сегнетоэлектрические, так и антисегнетоэлектрические свойства в зависимости от внешних воздействий и условий получения [4, 7]. В данной работе рассмотрены электрофизические свойства керамики твердых растворов на основе ниобата натрия с замещением ионов ниобия ионами железа $\text{Na}(\text{Nb}_{0.9}\text{Fe}_{0.1})\text{O}_{3-\delta}$ (NNF10) и висмута $\text{Na}(\text{Nb}_{0.9}\text{Bi}_{0.1})\text{O}_{3-\delta}$ (NNB10) в широком интервале частот и температур и фазовые переходы в исследуемой области.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Образцы обоих составов были получены по классической керамической технологии. Легирование производилось в количестве 10 мол. %. В обоих случаях замещение проводилось по позициям ниобия. В качестве исходных компонентов использовались Na_2CO_3 марки “х. ч.” 99.8% и Nb_2O_5 марки “ос. ч.” 99.99%. Для введения легирующих примесей использовали Fe_2O_3 (ч. д. а.

99%) и Bi_2O_3 (ч. д. а. 99.9%). Компоненты, взвешенные в требуемых пропорциях согласно формуле соединений $\text{Na}(\text{Nb}_{0.9}\text{Me}_{0.1})\text{O}_{3-\delta}$, где Me соответственно либо Bi, либо Fe, смешивались вручную в среде этилового спирта. Далее после предварительного формования проводился синтез при 700°C в течение 4 ч. После повторного измельчения выполнялось одностороннее прессование под давлением 5 МПа для формования заготовок в форме диска диаметром 10 мм. Спекание проводили в алундовых тиглях при температуре 1100°C в течение 4 ч. Electrodes на готовые образцы наносились вжиганием серебряносодержащей пасты.

Электрофизические свойства исследовались в частотном диапазоне 1 Гц–1 МГц и диапазоне температур от комнатной до 650°C на фазочувствительном измерителе Вектор-175 (Newtons4th Ltd).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Согласно проведенным измерениям, была построена температурная зависимость диэлектрической проницаемости для исследуемых образцов. Как можно видеть на рис. 1а в керамике NNB10 ее максимум наблюдается при 260°C, что связано с фазовым переходом при данной температуре. Кроме того, в районе 100°C можно наблюдать небольшой изгиб на зависимости $\epsilon(T)$, что также может быть связано с промежуточным фазовым переходом в сегнетоэлектрической фазе. Для выяснения природы фазового перехода была построена зависимость $1/\epsilon(T)$ для частоты 1 кГц. Как можно видеть для керамики NNB10 выше температуры максимума диэлектрической про-

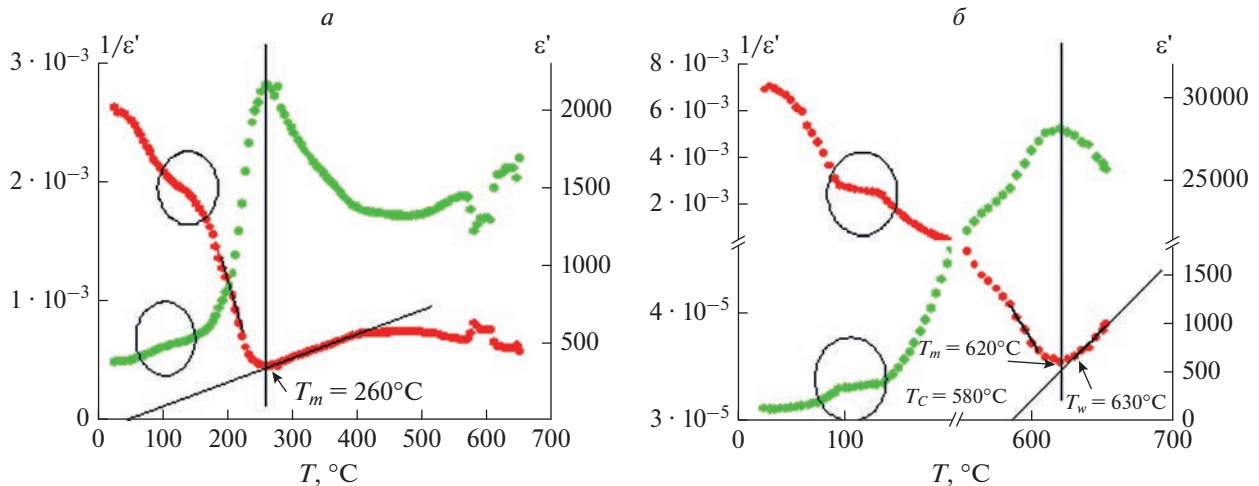


Рис. 1. Температурная зависимость ϵ (зеленый график) и $1/\epsilon$ (красный график) для керамики NNB10 (а) и NNF10 (б).

нищаемости выполняется закон Кюри–Вейса, согласно которому график $1/\epsilon(T)$ может быть линейно аппроксимирован по формуле [8]:

$$\epsilon = \frac{C}{T - T_C}, \quad (1)$$

где C – постоянная Кюри–Вейса, T_C – температура Кюри–Вейса. В данной керамике вычисленное значение $C = 5 \cdot 10^5$, а $T_C = 50^\circ\text{C}$, что почти на 200°C ниже температуры максимума диэлектрической проницаемости. Полученное значение постоянной Кюри–Вейса соответствует сегнетоэлектрическим фазовым переходам типа смещения, что является наиболее характерным механизмом формирования спонтанной поляризации для ионных оксидных сегнетоэлектриков со структурой типа перовскита [9].

Ниже 260°C зависимость $1/\epsilon(T)$ также описывается линейным участком с тангенсом угла наклона $-1.8 \cdot 10^{-5}$. Отношение данных параметров выше и ниже температуры фазового перехода дает значение близкое к 8. Таким образом, правило двойки, характерное для фазовых переходов 2 рода не выполняется для данных материалов [8]. Все вышесказанное позволяет определить фазовый переход в керамике NNB10 как фазовый переход 1 рода.

Напротив, для керамики NNF10 максимум диэлектрической проницаемости наблюдается при 620°C , т.е. практически при температуре Кюри чистого ниобата натрия (рис. 1б). Стоит отметить, что в ней также можно наблюдать небольшое искривление на зависимости $\epsilon(T)$ в районе 100°C . Зависимость обратной диэлектрической проницаемости от температуры отличается от аналогичной зависимости для керамики NNB10. Так же как и в первом случае выше и ниже температуры фазового перехода она имеет линейный харак-

тер, но отношение тангенсов угла наклона прямых примерно равно 2, а вычисленное значение постоянной Кюри–Вейса больше на порядок, чем для NNB10 ($C = 7.7 \cdot 10^6$). Вместе с тем, согласно формуле (1), температура Кюри–Вейса составляет 580°C , что на 40°C ниже температуры максимума диэлектрической проницаемости, что характерно для фазовых переходов 1 рода. Данные факты позволяют определить фазовый переход 1 рода, близкий ко 2, но требует дополнительного уточнения.

Стоит отметить, что в керамике NNF10 можно наблюдать расхождение между температурой максимума диэлектрической проницаемости и температурой начала выполнения закона Кюри–Вейса (630°C). Такое поведение может говорить о размытии фазового перехода [10, 11]. Поэтому был проведен анализ температурной зависимости диэлектрической проницаемости при разной частоте подаваемого внешнего электрического поля.

Как можно видеть на рис. 2а в керамике NNB10 на частотах выше 145 Гц положение T_m не зависит от частоты. На частотах ниже 145 Гц после максимума наблюдается резкий рост диэлектрической проницаемости. Чем ниже частота, тем интенсивнее рост. Таким образом, на частотах 1 и 10 Гц максимум отсутствует.

Для керамики NNF10 при увеличении частоты максимум диэлектрической проницаемости размывается и смещается в область высоких температур, что характерно для сегнетоэлектриков-релаксоров (рис. 2б). В целом, замещение ниобия железом приводит к более высоким значениям диэлектрической проницаемости и диэлектрических потерь, чем в случае замещения висмутом.

Согласно литературным данным [1, 12, 13] ниобат натрия имеет несколько фазовых перехо-

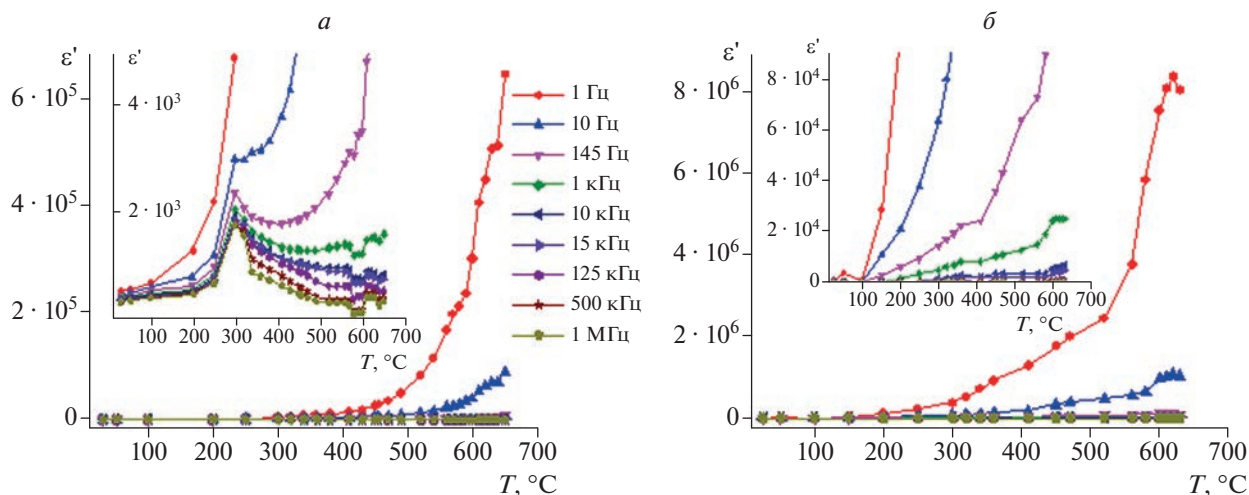


Рис. 2. Температурная зависимость диэлектрической проницаемости ϵ на частотах от 1 Гц до 1 МГц для керамики NNB10 (a) и NNF10 (б). На вставках представлены зависимости $\epsilon(T)$ для высоких частот.

дов в исследуемой области температур: 360, 430, 470, 520, 580, 640°C. Последний соответствует переходу в параэлектрическое состояние. При легировании катионами висмута и железа происходит изменение фазовой диаграммы кардинальным образом. Но, несмотря на то что степень окисления вводимых катионов одинаковая, влияние на картину фазовых переходов в твердом растворе они оказывают разное. Скорее всего, это связано с разными ионными радиусами данных элементов.

Введение примеси с валентностью меньше исходного катиона приводит к формированию нестехиометрических составов с повышенной дефектностью структуры. Так требование электронейтральности в ионных оксидах при подобном гетероэлектронном замещении приводит к образо-

ванию кислородных вакансий, что оказывает значительное влияние на свойства материалов. В частности, подобного рода дефекты определяют наличие в структуре материала слабосвязанных зарядов, которые могут принимать участие как в проводимости внутри зерен, так и в формировании объемных зарядов, участвующих в миграционной поляризации (или поляризации Маквелла–Вагнера). Последнее вносит весомый вклад в диэлектрическую проницаемость и диэлектрические потери на низких частотах, где они достигают гигантских значений за счет значительной разности в электрических свойствах внутри зерен и на границах зерен [14, 15].

Для выяснения природы этих зарядов была проанализирована температурная зависимость электропроводности керамик при различной частоте поля. По полученным данным электропроводность увеличивается при росте частоты и температуры. Как можно видеть на рис. 3 зависимость $\ln \sigma(1/T)$ можно линейно аппроксимировать. Следовательно, выполняется закон Аррениуса

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(\frac{E_a}{kT}\right), \quad (2)$$

который позволяет определить энергию активации носителей заряда, участвующих в проводимости. Это значение отличается у керамики разного состава. Ниже температуры фазового перехода у NNB10 на всех частотах угол наклона линейных участков практически одинаков и слабо зависит от температуры. Вычисленное согласно (2) значение энергии активации равно в среднем 0.05 эВ. Но выше температуры фазового перехода оно увеличивается и достигает значения 1.2 эВ. Следовательно, происходящая при фазовом переходе перестройка структуры способству-

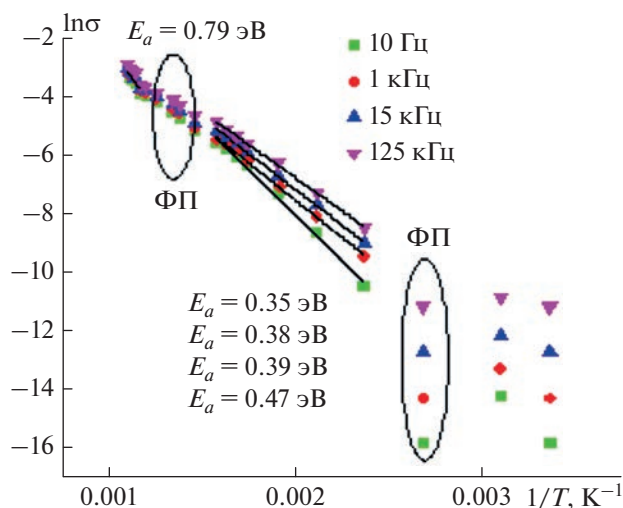


Рис. 3. Зависимость $\ln \sigma(1/T)$ для керамики NNF10.

ет образованию кислородно-ионной проводимости. Что характерно для перовскитоподобных структур в кубической фазе [16].

Напротив, в керамике NNF10 при температурах ниже фазового перехода электропроводность на порядок выше, чем в NNB10 (10^{-2} См · м⁻¹). Расчет энергии активации дает значения, характерные для поляронной проводимости: 0.47, 0.39, 0.38 и 0.35 эВ соответственно на частотах 10 Гц, и 1, 15 и 125 кГц. Откуда следует уменьшение энергии активации с ростом частоты поля, что, вероятно, можно объяснить уменьшением радиуса полярона (рис. 3). Разница в энергии активации и величине проводимости для исследуемых составов хорошо согласуется с тем фактом, что величина электронной проводимости обычно значительно больше ионной.

Выше температуры фазового перехода в керамике NNF10 $E_a = 0.79$ эВ. Данное значение может быть характерно как для поляронной электропроводности, так и для ионной.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, при равной степени окисления катионов примеси, вводимых в ниобат натрия в позицию ниобия, разница в ионных радиусах приводит к совершенно различному изменению картины фазовых переходов и электрофизических свойств в данном соединении. Так в керамике NNF10 сохраняется высокотемпературный фазовый переход ($T_m = 620^\circ\text{C}$), характерный для ниобата натрия, но проявляются релаксорные свойства материала. Кроме того, обнаружена высокая поляронная проводимость как в низко-, так и в высокотемпературной фазе. В керамике NNB10 максимум диэлектрической проницаемости соответствует 260°C и его положение не зависит от

частоты поля. При данном фазовом переходе происходит изменение типа проводимости на кислородно-ионную.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Megaw H.D. // *Ferroelectrics*. 1974. V. 7. P. 87.
2. Palatnikov M., Sidorov N., Efremov V. et al. // *Ferroelectrics*. 2008. V. 367. No. 1. P. 55.
3. Ивлиев М.П., Раевский И.П., Резниченко Л.А. и др. // *ФТТ*. 2003. Т. 45. № 10. С.1886; Ivliev M.P., Raevskii I.P., Reznichenko L.A. et al. // *Phys. Solid State*. 2003. V. 45. No. 10. P. 1984.
4. Раевская С.И. Диэлектрические свойства монокристаллов и керамики твердых растворов на основе ниобата натрия. Дис. ... канд. физ.-мат. наук. Ростов-на-Дону: Ростовский гос. ун-т, 2006. 174 с.
5. Shi R., Pu Y., Wang W. et al. // *J. Alloys Compounds*. 2020. V. 815. Art. No. 152356.
6. Jiang J., Meng X., Li L. et al. // *Chem. Engin. J.* 2021. V. 422. Art. No. 130130.
7. Fritsch D. // *Adv. Mater. Sci. Engin.* 2018. V. 2018. Art. No. 6416057.
8. Гинзбург В.Л. // *УФН*. 2001. Т. 171. № 10. С. 1091; Ginzburg V.L. // *Phys. Usp.* 2001. V. 44. No. 10. P. 1023.
9. Накамура Т. // *Автометрия*. 1978. № 1. С. 29.
10. Cheng Y., Xing J., Wu Ch. et al. // *J. Alloys Compounds*. 2020. V. 815. Art. No. 52252.
11. Xie Y., Xing J., Tan Z. et al. // *Ceramics*. 2022. V. 48. No. 5. P. 6565.
12. Wood E.A. // *Acta Cryst.* 1951. V. 4. P. 353.
13. Смоленский Г.А. Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики. Л.: Наука, 1971. 476 с.
14. Raevski I.P., Kubrin S.P., Dellis J.-L. et al. // *Ferroelectrics*. 2008. V. 371. No. 1. P. 113.
15. Sinclair D.C., Adams T.B., Morrison F.D., West A.R. // *Appl. Phys. Lett.* 2002. V. 80. P. 2153.
16. Cheng Y., Zhao H., Teng D. et al // *J. Membr. Sci.* 2008. V. 322. No. 2. P. 484.

Phase transitions in $\text{Na}(\text{Nb}_{0.9}\text{Me}_{0.1})\text{O}_3 - \delta$ (Me = Bi, Fe) solid solutions

O. N. Ospelnikov^a, E. V. Barabanova^{a, *}

^a Tver State University, Tver, 170002 Russia

*e-mail: pechenkin_kat@mail.ru

We investigated the temperature dependence of the permittivity and electrical conductivity of sodium niobate ceramics doped with iron or bismuth in a wide frequency range of the external field. The phase transitions and their characteristics in these solid solutions, as well as the mechanisms of conduction, are determined.

УДК 537.226

ВЛИЯНИЕ КИСЛОРОДНЫХ ВАКАНСИЙ НА ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$

© 2023 г. И. И. Гумарова^{1, 2, *}, Р. Ф. Мамин¹

¹Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

²Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
“Казанский (Приволжский) федеральный университет”, Институт физики, Казань, Россия

*E-mail: iiriyanzina@kpfu.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Для гетероструктуры $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$ исследовано влияние присутствия кислородных вакансий, расположенных в разных слоях гетероструктуры, на структурные, электронные и магнитные свойства с помощью расчетов из первых принципов. Было получено, что присутствие вакансий в любом слое гетероструктуры индуцирует возникновение интерфейсной проводимости, сосредоточенной в рамках атомарного слоя.

DOI: 10.31857/S0367676522700983, EDN: NOYGAF

Открытие двумерного электронного газа (2ДЭГ) в 2004 г. Отомо и Хвангом [1] дало толчок новому направлению в физике конденсированного состояния, когда появилась возможность совмещать в одном материале несовместимые свойства, например сверхпроводимость [2–4] и магнетизм [5] на границе раздела $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ (LAO/STO). Большинство гетероструктур из предыдущих работ по 2ДЭГ на границах оксидов содержали титанат стронция SrTiO_3 в качестве подложки, в котором межфазный магнетизм очень слаб из-за немагнитной природы исходного материала. Было также показано, что магнетизм в таких системах возникает благодаря дефектам [6–11]. Например, максимальный магнитный момент, создаваемый кислородной вакансией, расположенной на границе LAO/STO, составляет $0.2 \mu_B$ на атом Ti, находящийся по соседству с дефектом [12].

Несмотря на большой интерес к гетероструктурам за последние два десятилетия и огромное количество исследований, эта область по-прежнему увлекательна и привлекает внимание открытием все новых явлений [13–15]. Очевидно, что для усиления межфазного магнетизма необходимо использовать магнитные изоляторы в составе гетероструктур для создания спин-поляризованного 2ДЭГ. Еще более перспективным здесь является манипулирование ее проводящим состоянием с помощью электрического поля с использованием сегнетоэлектрических материалов

[13–15], а также реализация обратного магнито-электрического эффекта, когда намагниченность можно изменить электрическим полем [16].

Совсем недавно спин-зависимый эффект переключения был продемонстрирован на системе на основе перовскитов $\text{YTiO}_3/\text{PbTiO}_3$, где было предложено использовать антиферромагнетик в качестве источника магнетизма и сегнетоэлектрик для манипулирования межфазными состояниями [16]. Использование материала антиферромагнетика типа А было поддержано тем фактом, что как эффект поля, так и антиферромагнитный порядок типа А зависят от слоя, а ферромагнитный порядок типа А лучше сочетался бы с эффектом поля [16].

В качестве модельной системы была исследована гетероструктура $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$ (LMO/BTO) вдоль направления [001]. На основе расчетов теории функционала плотности (DFT) изучено влияние кислородных вакансий, расположенных в разных слоях гетероструктуры, на электронные и магнитные свойства.

Расчеты *ab initio* были основаны на теории функционала плотности (DFT) [17, 18]. Обменные и корреляционные эффекты учитывались с помощью приближения обобщенного градиента (GGA-PBE) [19]. Уравнения Кона–Шама были решены с помощью базиса плоских волн (PAW) [20], реализованного в программе Vienna Ab-Initio Simulation Package (VASP) [21–23], являющейся частью программного пакета Medea® Materials

Design [24]. Ограничение по энергии было выбрано равным 400 эВ, остаточные силы — $0.05 \text{ эВ/\text{\AA}}$, сходимость по энергии — 10^{-5} эВ . Зона Бриллюэна была разделена с помощью сетки $5 \times 5 \times 1$.

Расчеты были произведены с поправкой $+U$ на состояния Mn 3*d*, Ti 3*d* и La 4*f*, которая позволяет улучшить описание электронных свойств LaMnO_3 и BaTiO_3 в объемных и сложных конфигурациях, давая правильное расщепление 3*d*-состояний Mn и Ti, а также несмещение 4*f*-состояний La [25]. Был использован упрощенный подход Дударева [26]: были использованы значения U , равные 4 эВ для состояний Mn [27], 2 эВ — для Ti и 8 эВ — для состояний La [25].

Модель гетероструктуры состояла из центральной области LaMnO_3 , состоящей из 11-атомарных слоев с интерфейсными слоями LaO с обеих сторон, и тремя атомарными слоями BaTiO_3 с интерфейсными TiO_2 и поверхностными BaO также с обеих сторон (для гетероинтерфейсов с другими контактными слоями не были получены стабильные конфигурации, что согласуется с результатами, полученными в [28]). Наконец, чтобы избежать взаимодействия гетероструктур с их периодическими изображениями, в соответствии с предыдущими работами [26, 29], была добавлена область вакуума шириной $\approx 20 \text{ \AA}$. Параметры решетки $a = 5.709 \text{ \AA}$ и $b = 5.675 \text{ \AA}$ были взяты равными расчетным значениям объемного LaMnO_3 и сохранялись для всех последующих расчетов, моделируя тем самым стабильность подложки, при этом все атомные положения всех атомов были полностью оптимизированы.

После того, как выбранные параметров расчетов были апробированы на моделях объемных BaTiO_3 и LaMnO_3 , были построены гетероструктуры BaTiO_3 и LaMnO_3 , содержащие кислородные вакансии в разных слоях. При этом концентрация вакансий была очень высокой, а именно половина атомов кислорода была удалена из атомарного слоя. Вид результирующей ячейки, использованной для расчетов, с кислородными вакансиями в поверхностном слое представлен на рис. 1*а*. Эта ситуация приводит к тому, что поверхностный слой BaO приобретает заряд и становится слоем Ba_2O с формальным зарядом +2 и заполнению самой нижней части зоны проводимости, состоящей из уровней Ti и Mn 3*d*. Это можно видеть на рис. 1*б* и 1*в*, где представлены спектры плотности состояний для гетероструктуры LMO/ВТО, содержащей три слоя ВТО (6 атомарных слоев, с кислородной вакансией и без нее, соответственно). Чистая гетероструктура является полупроводником с шириной запрещенной зоны, равной $\approx 0.18 \text{ эВ}$ (рис. 1*в*), а гетероструктура с кислородной вакансией на поверхности — проводником. Аналогичные спектры были получены для гетероструктур с кислородными вакан-

сиями, находящимися в других атомарных слоях сегнетоэлектрика, и качественно все они имеют одинаковые характеристики, потому в статье не приводятся.

Для выяснения характера распределения проводимости по гетероструктуре были рассчитаны спектры плотности состояний с разрешением по слоям (рис. 2) для чистой гетероструктуры (*а*), с вакансией в поверхностном слое BaO (*б*) и в интерфейсном слое MnO_2 (*в*). Для второй гетероструктуры с вакансией на поверхности можно видеть, что вклад в проводимость присутствует от атомов Ti, находящихся в поверхностном слое ВТО, и далее происходит уменьшение плотности состояний на уровне Ферми по мере приближения к интерфейсу. Поскольку на поверхности создается положительный заряд $(\text{BaO})^{2+}$ вследствие присутствия вакансий, возникновение проводящего состояния на поверхности неудивительно. Присутствие нескомпенсированного заряда на поверхности приводит к возникновению электрического поля, направленного к поверхности гетероструктуры. Это также можно видеть на послойном спектре плотности состояний, а именно постепенный сдвиг низа зоны проводимости вниз по энергии по мере движения от интерфейса к поверхности. Наконец, поскольку возникшее электростатическое поле приводит к электронной перестройке в сегнетоэлектрике, очевидно ожидать того же в LMO. На послойном спектре видно, что произошел сдвиг вниз по энергии состояний Mn и O в LMO до пересечения с уровнем Ферми для интерфейсного слоя. При этом второй слой LMO вклада в проводимость не дает, что говорит о том, что носители зарядов сосредоточены в рамках одного атомарного слоя. В третьем от интерфейса слое в LMO также присутствует вклад, ниже интерфейсного. Схожий характер распределения проводимости в случае присутствия вакансий на интерфейсе, как видно на рис. 2*в*. Запрещенная зона в интерфейсном слое полностью закрыта.

Наконец, были рассчитаны энергии дефектообразования для кислородных вакансий, расположенных в разных слоях гетероструктуры. Энергии образования дефектов рассчитывались по методу, предложенному Жонгом [30]. В частности, энергия образования кислородной вакансии E_{form} определяется как: $E_{\text{form}} = (E_{\text{total}} - (E_{\text{bare}} - n\mu_0(T, p))) / n$, где n — количество вакансий на элементарную ячейку. E_{bare} и E_{total} — полная энергия чистой и с кислородной вакансией соответственно. Наконец, $\mu_0(T, p)$ обозначает химический потенциал кислорода, зависящий от температуры и парциального давления кислорода. Было использовано соотношение $\mu_0(T, p) = \frac{1}{2} E_{\text{O}_2}$, где E_{O_2} — полная энергия свободной изолированной молекулы

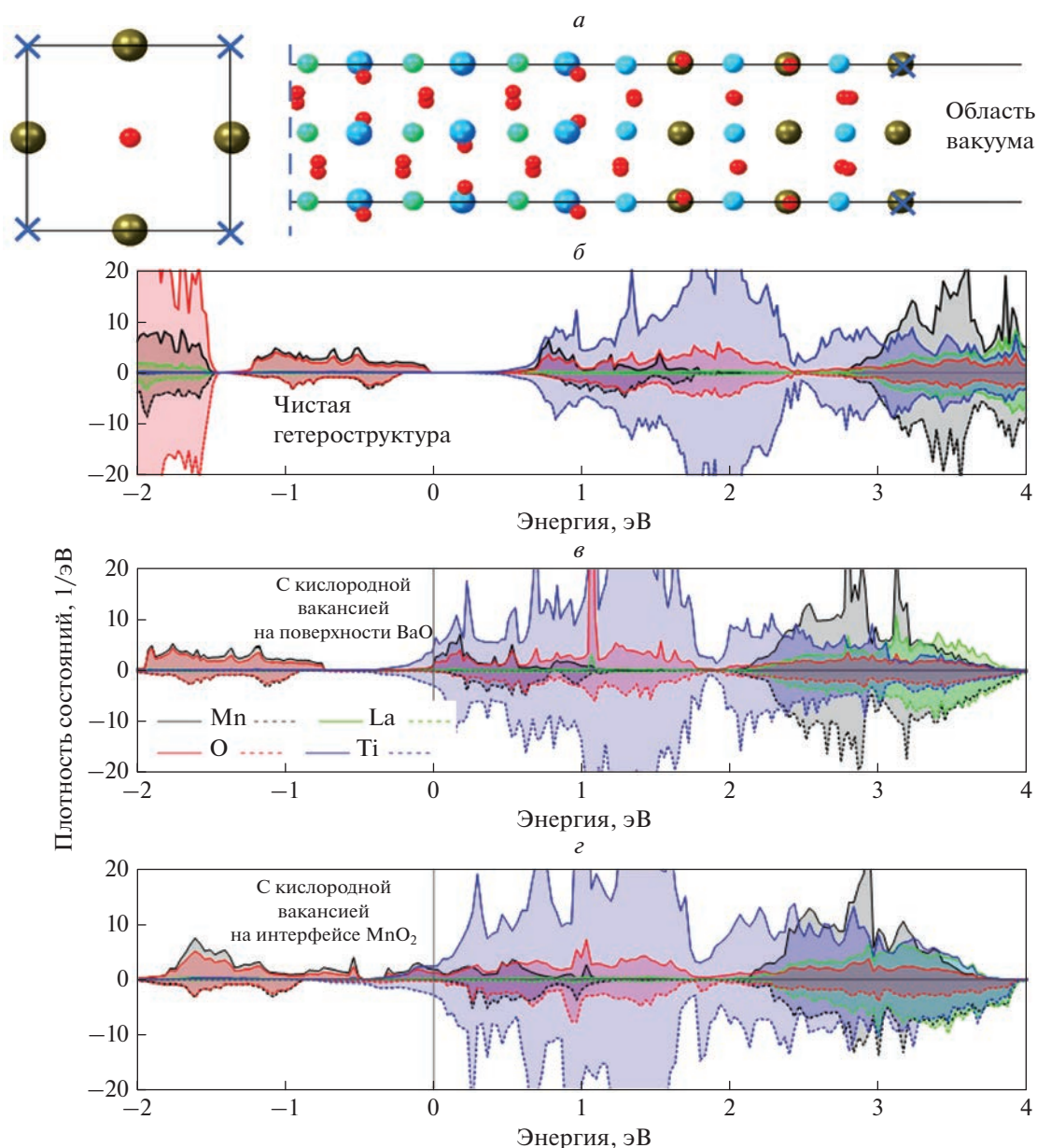


Рис. 1. Вид сверху и вид сбоку на ячейку гетероструктуры $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$, содержащую три слоя BaTiO_3 (6 атомарных слоев с каждой стороны) и кислородные вакансии в поверхностном слое (а). Изображена половина ячейки, в то время как вторая половина представляет собой зеркальную копию относительно пунктирной линии. Область вакуума, не изображенная на рисунке, оставляла ≈ 20 Å. Крестиками показано расположение кислородной вакансии. Спектр плотности состояний, разрешенный по атомам и по спинам, для гетероструктуры $3\text{BaTiO}_3/\text{LaMnO}_3$ с кислородной вакансией на поверхности (б). Спектр плотности состояний, разрешенный по атомам и по спинам, для чистой гетероструктуры $3\text{BaTiO}_3/\text{LaMnO}_3$ (в). Спектр плотности состояний, разрешенный по атомам и по спинам, для гетероструктуры $3\text{BaTiO}_3/\text{LaMnO}_3$ с кислородной вакансией на интерфейсе MnO_2 (г).

кислорода при $T = 0$ К, полученная при спин-поляризованном расчете. Такой подход позволяет получить информацию об относительной стабильности дефектов, расположенных в разных слоях гетероструктуры.

Так, как показано на рис. 3а, вакансии наиболее вероятны в слоях BaO с равной вероятностью во всех подслоях. При этом присутствие вакансии

в любом слое приводит к возникновению проводящих состояний. Кроме того, наименьшая энергия образования была получена для вакансии в интерфейсном слое MnO_2 . В то же время распределение магнитного момента существенно не меняется в зависимости от положения вакансии и в целом ниже, чем для чистой гетероструктуры, что изображено на рис. 3б.

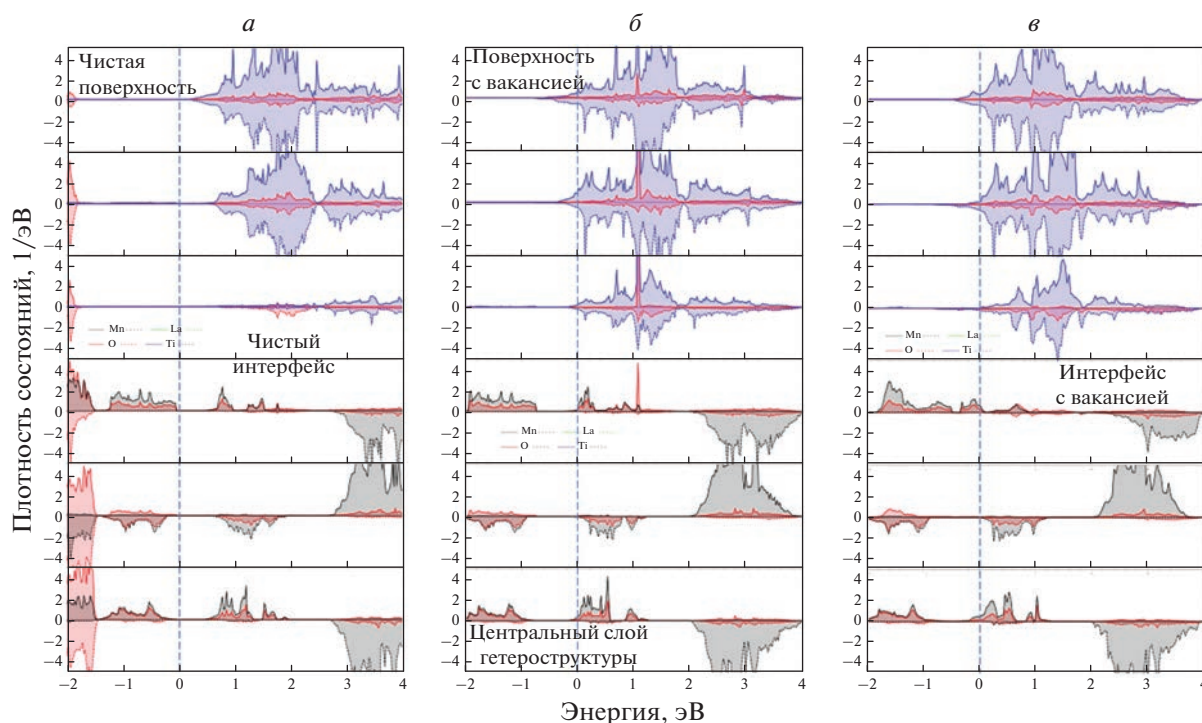


Рис. 2. Послойный спектр плотности состояний для чистой $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$ гетероструктуры (а), структуры с кислородной вакансией на поверхности (б) и на интерфейсе (в).

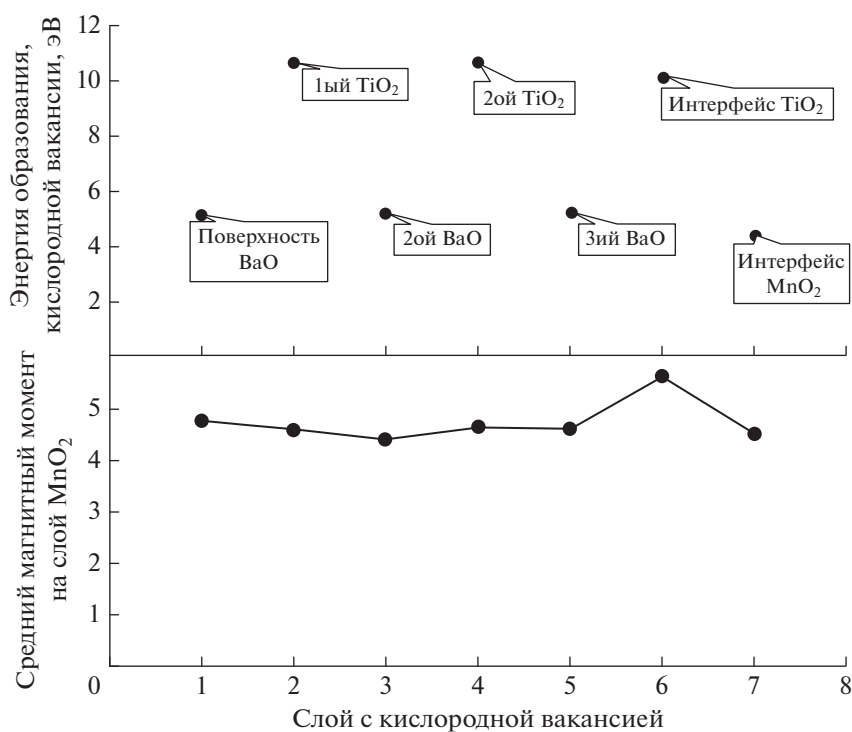


Рис. 3. Энергии образования кислородных вакансий (а) и средний магнитный момент, приходящийся на слой MnO_2 (б), в гетероструктуре $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$ с тремя слоями BaTiO_3 в зависимости от положения дефектов в гетероструктуре. Первый слой соответствует поверхностному слою, дальнейшие слои соответствуют чередованию атомарных слоев BaO и TiO_2 .

В результате выполненного исследования было продемонстрировано, что кислородные вакансии в гетероструктуре ЛМО/ВТО индуцируют переход в проводящее состояние. Возникновение проводимости вызвано электронной перестройкой, происходящей в гетероструктуре, в результате которой уровни Mn и O в слое ЛМО и уровни Ti в слое ВТО пересекают уровень Ферми. Также, было показано, что присутствие вакансий в слое сегнетоэлектрика не влияет на величину магнитных моментов на атомах Mn, вакансии в интерфейсном слое увеличивает намагниченность на $\approx 1 \mu_B$.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 21-12-00179). Вычислительные ресурсы предоставила Лаборатория компьютерного дизайна новых материалов Казанского федерального университета.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ohtomo A., Hwang H.Y. // Nature. 2004. V. 427. P. 423.
2. Reyren N., Thiel S., Caviglia A.D. et al. // Science. 2007. V. 317. P. 1196.
3. Bert J.A., Kalisky B., Bell C. et al. // Nature Phys. 2011. V. 7. P. 767.
4. Li L., Richter C., Mannhart J., Ashoori R.C. // Nature Phys. 2011. V. 7. P. 762.
5. Brinkman A., Huijben M., Van Zalk M. et al. // Nature Mater. 2007. V. 6. P. 493.
6. Pavlenko N., Kopp T., Tsymbal E.Y. et al. // Phys. Rev. B. 2012. V. 86. No. 6. Art. No. 064431.
7. Pavlenko N., Kopp T., Tsymbal E.Y. et al. // Phys. Rev. B. 2012. V. 85. Art. No. 020407.
8. Pavlenko N., Kopp T., Mannhart J. // Phys. Rev. B. 2013. V. 88. Art. No. 201104.
9. Lechermann F., Boehnke L., Grieger D., Piefke C. // Phys. Rev. B. 2014. V. 90. Art. No. 085125.
10. Park J., Cho B.G., Kim K.D. et al. // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 110. Art. No. 017401.
11. Salluzzo M., Gariglio S., Stornaiuolo D. et al. // Phys. Rev. Lett. 2013. V. 111. Art. No. 087204.
12. Piyanzina I.I., Eyert V., Lysogorskiy Y.V. et al. // J. Phys. Cond. Matter. 2019. V. 31. Art. No. 295601.
13. Fredrickson K.D., Demkov A.A. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. Art. No. 115126.
14. Niranjana M.K., Wang Y., Jaswal S.S., Tsymbal E.Y. // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 103. Art. No. 016804.
15. Liu X., Tsymbal E.Y., Rabe K.M. // Phys. Rev. B. 2018. V. 97. Art. No. 094107.
16. Weng Y., Niu W., Huang X. et al. // Phys. Rev. B. 2021. V. 103. Art. No. 214101.
17. Hohenberg P., Kohn W. // Phys. Rev. 1964. V. 136. Art. No. B864.
18. Kohn W., Sham L.J. // Phys. Rev. 1965. V. 140. Art. No. A1133.
19. Perdew J.P., Burke K., Ernzerhof M. // Phys. Rev. Lett. 1996. V. 77. Art. No. 3865.
20. Blöchl P.E. // Phys. Rev. B. 1994. V. 50. Art. No. 17953.
21. Kresse G., Furthmüller J. // Comp. Mater. Sci. 1996. V. 6. P. 15.
22. Kresse G., Furthmüller J. // Phys. Rev. B. 1996. V. 54. Art. No. 11169.
23. Kresse G., Joubert D. // Phys. Rev. B. 1999. V. 59. P. 1758.
24. Medea version 3.4. San Diego: Materials Design Inc., 2012.
25. Dudarev S.L., Botton G.A., Savrasov S.Y. et al. // Phys. Rev. B. 1998. V. 57. No. 3. P. 1505.
26. Piyanzina I.I., Kopp T., Lysogorskiy Y.V. et al. // J. Phys. Cond. Matter. 2017. V. 29. Art. No. 095501.
27. Wang L., Maxisch T., Ceder G. // Phys. Rev. B. 2006. V. 73. Art. No. 195107.
28. Ciucivara A., Sahu B., Kleinman L. // Phys. Rev. B. 2008. V. 77. Art. No. 092407.
29. Cossu F., Schwingenschluggl U., Eyert V. // Phys. Rev. B. 2013. V. 88. Art. No. 045119.
30. Zhang S.B., Northrup J.E. // Phys. Rev. Lett. 1991. V. 67. P. 2339.

Effect of oxygen vacancies on the electronic properties of the $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$ heterostructure

I. I. Gumarova^{a, b, *}, R. F. Mamin^a

^a Zavoisky Physical-Technical Institute, FRC Kazan Scientific Center of the Russian Academy of Science, Kazan, 420029 Russia

^b Kazan Federal University, Institute of Physics, Kazan, 420008 Russia

*e-mail: iipiyanzina@kpfu.ru

For the $\text{LaMnO}_3/\text{BaTiO}_3$ heterostructure, the influence of the presence of oxygen vacancies located in different layers of the heterostructure on the structural, electronic, and magnetic properties was studied using *ab initio* calculations. It was found that the presence of vacancies in any layer of the heterostructure induces the appearance of interface conductivity concentrated within the atomic layer.

УДК 538.9

ПЕРЕНОС НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА И ПОЛЯРИЗАЦИЯ В СТРУКТУРАХ М/PZT/М

© 2023 г. Л. А. Делимова¹, *, В. С. Юферев¹

¹Федеральное государственное бюджетное учреждение науки

“Физико-технический институт имени А.Ф. Иоффе Российской академии наук”, Санкт-Петербург, Россия

*E-mail: ladel@mail.ioffe.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Разработана модель нестационарного транспорта носителей заряда в сегнетоэлектрических структурах М/PZT/М. Предполагается, что при комнатной температуре генерированные кислородными вакансиями электроны захвачены на уровни Ti^{+3} и перемещаются между ними под действием электрических полей, вызванных внешним смещением и поляризацией. Распределение поляризации в пленке PZT описывается с разной степенью усложнения — от постоянной по величине вне дефектных слоев до определяющей уравнением, следующим из теории Ландау–Гинзбурга. Проведенное численное моделирование позволило объяснить причины и условия возникновения вольтамперных характеристик с необычными пиками токов, показать существование нескольких решений в модели Ландау–Гинзбурга для пленки с барьерами Шоттки и выявить реакцию заряженных доменных стенок на приложенное напряжение.

DOI: 10.31857/S0367676522700995, EDN: NPBSIO

ВВЕДЕНИЕ

Основным элементом практически всех электронных приборов на основе сегнетоэлектрических (СЭ) пленок является конденсаторная структура, состоящая из СЭ пленки с электродами. Наиболее распространенным СЭ материалом, применяемым в электронных приборах, является цирконат титанат свинца (PZT) благодаря высоким значениям поляризации и пьезоэлектрических коэффициентов и относительно низкой температуры кристаллизации [1, 2]. Под внешним напряжением пленка PZT показывает токи утечки, которые, будучи фактором, определяющим работу приборов, интенсивно исследовались [3–10]. Показано, что величина тока определяется инжекцией носителей через барьер Шоттки и диффузионно-дрейфовым переносом в объеме пленки, но транспорт носителей внутри пленки рассматривался с сильными упрощениями [3, 4]. На вольтамперных зависимостях (ВАХ) титаносодержащих сегнетоэлектриков наблюдаются особенности в виде так называемых областей отрицательного дифференциального сопротивления или пиков тока [3, 4, 6–9], которые объяснялись процессами заполнения ловушек [7] и релаксацией поляризации [6, 8]. Однако, в рассматриваемых моделях для эмиссии носителей, участвующих в переходном токе, использовались выражения, выведенные для стационарного тока

[11] и везде, кроме [12], слои объемного заряда (CO_3) барьеров Шоттки считались истощенными, хотя при больших значениях поляризации один из CO_3 может стать обогащенным. Также указанные модели не могли объяснить наши эксперименты, в которых ВАХ содержали ярко выраженные пики тока, никак не связанные с процессом переключения доменов. Такие пики тока мы наблюдали как в эпитаксиальных, так и в поликристаллических пленках со столбчатой структурой и непроводящими границами зерен [13, 14]. Для объяснения природы этих пиков, используя [15, 16], нами была сформулирована модель нестационарного транспорта носителей заряда в пленке PZT n -типа, где электроны, генерированные кислородными вакансиями, захватываются на уровни Ti^{+3} и перемещаются между ними под действием электрического поля [17]. В то же время для описания поляризации использовалась упрощенная модель с дефектными слоями, внутри которых поляризации равна нулю, а вне — не меняется по толщине пленки. В настоящей работе мы использовали более строгий подход, при котором поляризация в пленке рассчитывалась на основе теории Ландау–Гинзбурга (ЛГ). Целью работы являлось сравнение обеих моделей и исследование особенностей поляризации и транспорта носителей заряда в рамках теории ЛГ. Исследовалась нелегированная эпитаксиальная 210-нм пленка $Pb(Zr_{0.48}Ti_{0.52})O_3$, ориентированная в на-

правлении (001) на подложке $\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3$ [17, 18]. Моделирование ВАХ повторяло экспериментальную процедуру, в которой к поляризованной пленке прикладывалось напряжение в виде последовательных ступенек длительностью 200 мс, причем ток регистрировался в конце ступени. Время переключения СЭ доменов составляет ~2 мс, поэтому измеряемый в конце ступени ток уже не содержал вклада от тока переключения доменов, поскольку последний уже протек во внешнюю цепь.

МОДЕЛЬ: ПОСТОЯННАЯ ПОЛЯРИЗАЦИЯ – ДЕФЕКТНЫЙ СЛОЙ

Учитывались три вида зарядов: положительный заряд кислородных вакансий, отрицательный заряд электронов на уровнях Ti^{+3} , расположенных на 1 эВ ниже дна зоны проводимости [15, 16], и поляризационные заряды на границе пленка/дефектный слой. В квазинейтральной области пленки положительный заряд вакансий скомпенсирован отрицательным зарядом электронов на титане, но вблизи контактов уровни Ti^{+3} теряют электроны, что ведет к формированию CO_3 , изгибу дна зоны проводимости и уровней Ti . Движение электронов по уровням Ti^{+3} происходит посредством прыжковой проводимости и рассматривается в диффузионно-дрейфовом приближении. Соответствующее уравнение, а также уравнение Пуассона здесь не приводятся, так как их можно найти в [17]. Поляризация P проявляет себя только как поляризационный заряд на границе с дефектными слоями:

$$\epsilon_0 \epsilon_{d1} E^- = \epsilon_0 \epsilon_f E^+ + P \text{ при } x = h_{d1}, \quad (1a)$$

$$\epsilon_0 \epsilon_f E^- + P = \epsilon_0 \epsilon_{d2} E^+ \text{ при } x = L - h_{d1} - h_{d2}. \quad (1b)$$

Здесь ϵ_0 – проницаемость свободного пространства, ϵ_d и ϵ_f – диэлектрические константы дефектного слоя и сегнетоэлектрика, L , h_{d1} и h_{d2} – толщины пленки и дефектных слоев, а верхние индексы “–, +” обозначают величины электрического поля слева и справа от границы. Зависимость поляризации от приложенного смещения U имеет вид

$$P = P_0 + P_S \operatorname{th} \left(\frac{U \pm V_C}{2\delta} \right), \quad (2)$$

где константа P_0 учитывает разницу в значениях остаточной поляризации при положительном и отрицательном смещении, P_S – поляризация насыщения, а V_C – коэрцитивная сила. Это выражение довольно хорошо аппроксимирует экспериментальную петлю гистерезиса, если положить $P_0 = 10 \text{ мКл} \cdot \text{см}^{-2}$, $P_S = 83 \text{ мКл} \cdot \text{см}^{-2}$, $V_C = 3.15 \text{ В}$ и $2\delta = 2.814 \text{ В}$, $\epsilon_f = 160$. При моделировании ис-

пользовались следующие значения основных параметров, найденные путем подгонки рассчитанной и экспериментальной ВАХ [17]: подвижность $4 \cdot 10^{-11} \text{ см}^2 \cdot \text{В}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$, концентрация вакансий $N_{\text{vac}}^S = 2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$, высоты барьеров для электронов, соответствующие уровню Ti^{+3} 0.7 В, $h_{d1} = h_{d2} = 1 \text{ нм}$, $\epsilon_{d,f} = 160$.

Результаты моделирования представлены на рис. 1. Видно, что для положительно поляризованной пленки рассчитанная ВАХ (рис. 1a) содержит пик тока и на удивление хорошо совпадает с экспериментальной кривой. Для этой же пленки на рис. 1б–1г показаны распределения электронов, электрического поля E и потенциала для различных значений напряжений. Можно видеть, что у правого контакта (катода) образовался обогащенный слой, за счет которого при увеличении напряжения происходит схлопывание обедненного слоя у левого контакта, что приводит к уменьшению сопротивления и сверхлинейному возрастанию тока. Когда же обогащенный слой исчезает при $U = 2.9 \text{ В}$, сопротивление пленки начинает снова возрастать из-за увеличения толщины обедненного слоя теперь уже у правого контакта, которое сопровождается увеличением поля E и потенциала вблизи контакта и соответствующим уменьшением E в средней части пленки. В результате ток начинает уменьшаться несмотря на увеличение внешнего напряжения. В случае же отрицательно поляризованной пленки у правого контакта образуется обедненный слой, толщина которого непрерывно возрастает с ростом напряжения, в результате чего сопротивление пленки увеличивается, и величина тока меняется незначительно.

ПОЛЯРИЗАЦИОННАЯ МОДЕЛЬ ЛАНДАУ–ГИНЗБУРГА

В данном варианте транспортная модель остается прежней, а для вычисления распределения поляризации используется уравнение, которое следует из теории Ландау–Гинзбурга и с учетом перенормировки, а также пренебрежения пьезоэффектом и упругими деформациями, имеет вид:

$$-M \frac{\partial P}{\partial t} = 2\alpha_1 P + 4\alpha_2 P^3 + 6\alpha_3 P^5 + \frac{\partial \Phi}{\partial z} - \kappa \frac{\partial^2 P}{\partial z^2}, \quad (3a)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial P}{\partial z} &= P/\delta \text{ при } z = 0 \\ \text{и } \frac{\partial P}{\partial z} &= -P/\delta \text{ при } z = L, \end{aligned} \quad (3b)$$

где α_i ($i = 1, 2, 3$) – коэффициенты диэлектрической жесткости, κ – коэффициент градиента энергии, δ – экстраполяционная длина, а M есть кинетический коэффициент, который в системе СИ имеет размерность $\text{Ом} \cdot \text{м}$, а в системе CGS соответствует времени релаксации $\tau = M(9 \cdot 10^{11})^{-1} \text{ с}$.

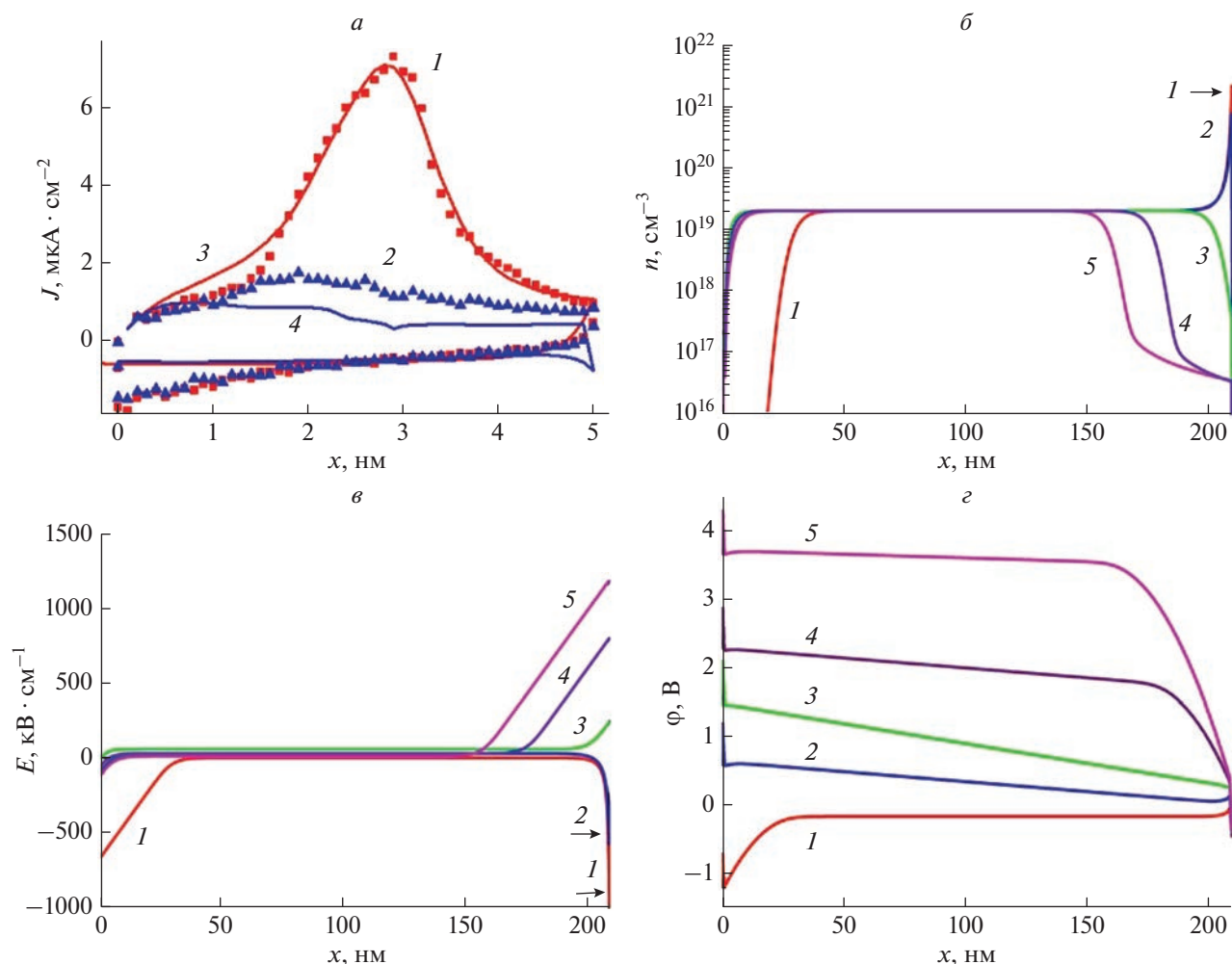


Рис. 1. Результаты расчетов по модели с постоянной по толщине пленки поляризацией: ВАХ измеренные (1, 2) и вычисленные (3, 4) при положительной (1, 3) и отрицательной (2, 4) предварительной поляризации (а). Распределения плотности электронов (б), электрического поля (в) и потенциала (г) по толщине пленки при разных величинах приложенного смещения V . Кривые: 1 – 0; 2 – 1.9; 3 – 2.8; 4 – 3.6; 5 – 5 В.

Коэффициент k принимался равным $10^{-3} \text{ м}^3 \cdot \Phi^{-3}$, $M = 10^4 \text{ Ом} \cdot \text{м}$, а $\delta = 0.1 \text{ нм}$. Согласно [19], значения коэффициентов α_i равны: $\alpha_1 = -5.577 \cdot 10^7 \text{ м} \cdot \Phi^{-1}$, $\alpha_2 = 4.534 \cdot 10^7 \text{ м}^5 \cdot \text{Кл}^{-2} \cdot \Phi^{-1}$ и $\alpha_3 = 1.441 \cdot 10^8 \text{ м}^9 \cdot \text{Кл}^{-4} \cdot \Phi^{-1}$. Однако, при этом остаточная поляризация оказывается равной $P_{\text{res}} = 52 \text{ мкКл} \cdot \text{см}^{-2}$, что существенно ниже тех значений, которые следуют из экспериментальной петли гистерезиса и получаются из формулы (2). Более того, при таких значениях поляризации обогащенный слой вообще не образуется [18] и пик тока не может быть получен. По этим причинам при моделировании ВАХ вместо коэффициентов α_i ($i = 1, 2$) мы задавали остаточную поляризацию P_{res} и коэрцитивное поле E_C , а коэффициент $\alpha_3 = 0$. По результатам тестовых расчетов были выбраны значения $P_{\text{res}} = 84 \text{ мкКл} \cdot \text{см}^{-2}$

и $E_C = 150 \text{ кВ} \cdot \text{см}^{-1}$, которые близки к экспериментальным данным.

Результаты моделирования показаны на рис. 2а–2г. Из рис. 2а, 2б следует, что распределения электронов и электрического поля в целом подобны распределениям на рис. 1. Однако толщина обогащенного слоя объемного заряда при нулевом напряжении оказывается существенно большей порядка нескольких нанометров, а максимальное значение плотности электронов почти на порядок меньше. Это связано с тем, что при контактных слоях, где происходит резкое изменение поляризации, существенно толще дефектных слоев в модели постоянной поляризации несмотря на малую величину длины экстраполяции. Расчетные ВАХ, показанные на рис. 2г, в целом согласуются с экспериментальными, хотя совпа-

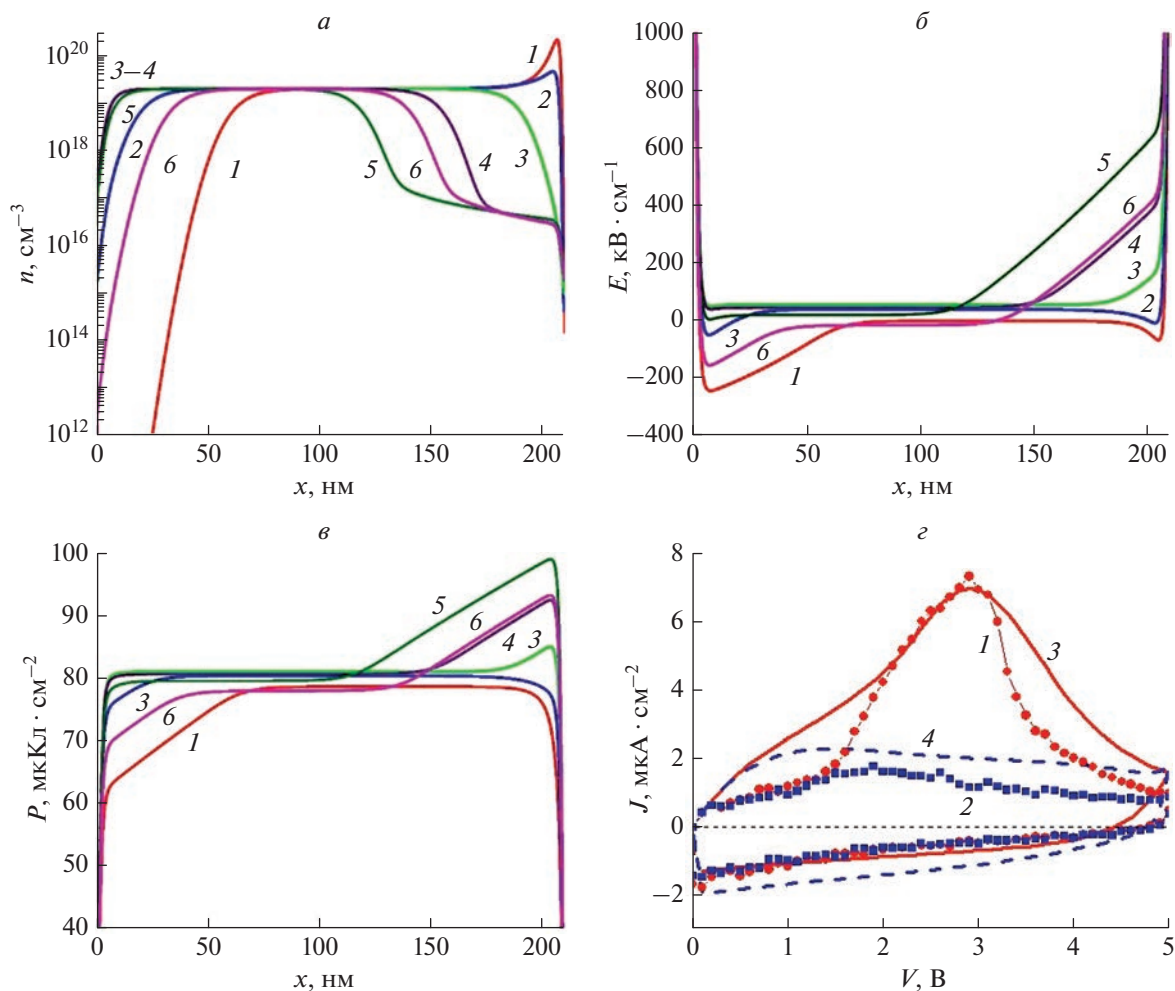


Рис. 2. Результаты расчетов по модели Ландау–Гинзбурга. Распределения плотности электронов (а), электрического поля (б), поляризации (в) по толщине пленки при величинах последовательно приложенного смещения V : 1 – 0 В; 2 – 1.9; 3 – 2.8; 4 – 3.6; 5 – 5; 6 – 2.5; ВАХ (г) измеренные (1, 2) и вычисленные (3, 4) при положительной (1, 3) и отрицательной (2, 4) предварительной поляризации.

дение хуже, чем на рис. 1а, что связано с перечисленными выше причинами.

МНОЖЕСТВЕННОСТЬ РЕШЕНИЙ МОДЕЛИ ЛАНДАУ–ГИНЗБУРГА

Модель ЛГ, использованная выше для описания пиков тока, в действительности имеет не одно решение, а несколько при одних и тех же значениях параметров, входящих в задачу. Результаты же, показанные на рис. 2, описывают лишь одно из этих решений. Это хорошо видно на рис. 3, где показаны распределения P , E , n , p и ϕ по толщине пленки для тех же самых параметров, которые использовались для анализа пиков тока, кроме коэффициентов α_i , которые в этом случае были взяты из [19]. Видно, что кроме обычной (однодоменной) структуры (кривые 1, 1'), которая исследовалась выше, имеются доменные

структуры типа “head-to-head” (НН) и “tail-to-tail” (ТТ) с положительными и отрицательными заряженными доменными стенками. Впервые на множественность решений в термодинамической модели ЛГ было указано в работе [20]. Однако, впоследствии об этом обстоятельстве, по-видимому, забыли. Как и ожидалось, толщина НН доменной стенки на рис. 3а существенно меньше толщины ТТ стенки. Это связано с тем, что концентрация вакансий, компенсирующих отрицательный поляризационный заряд в ТТ доменной стенке, является фиксированной, а концентрация электронов в НН доменной стенке в случае n -проводимости может возрастать до весьма больших значений. Появление дырок на рис. 3г связано с сильным падением потенциала в окрестности ТТ доменной стенки (рис. 3в). В результате валентная зона в этом месте изгибается вверх и приближается

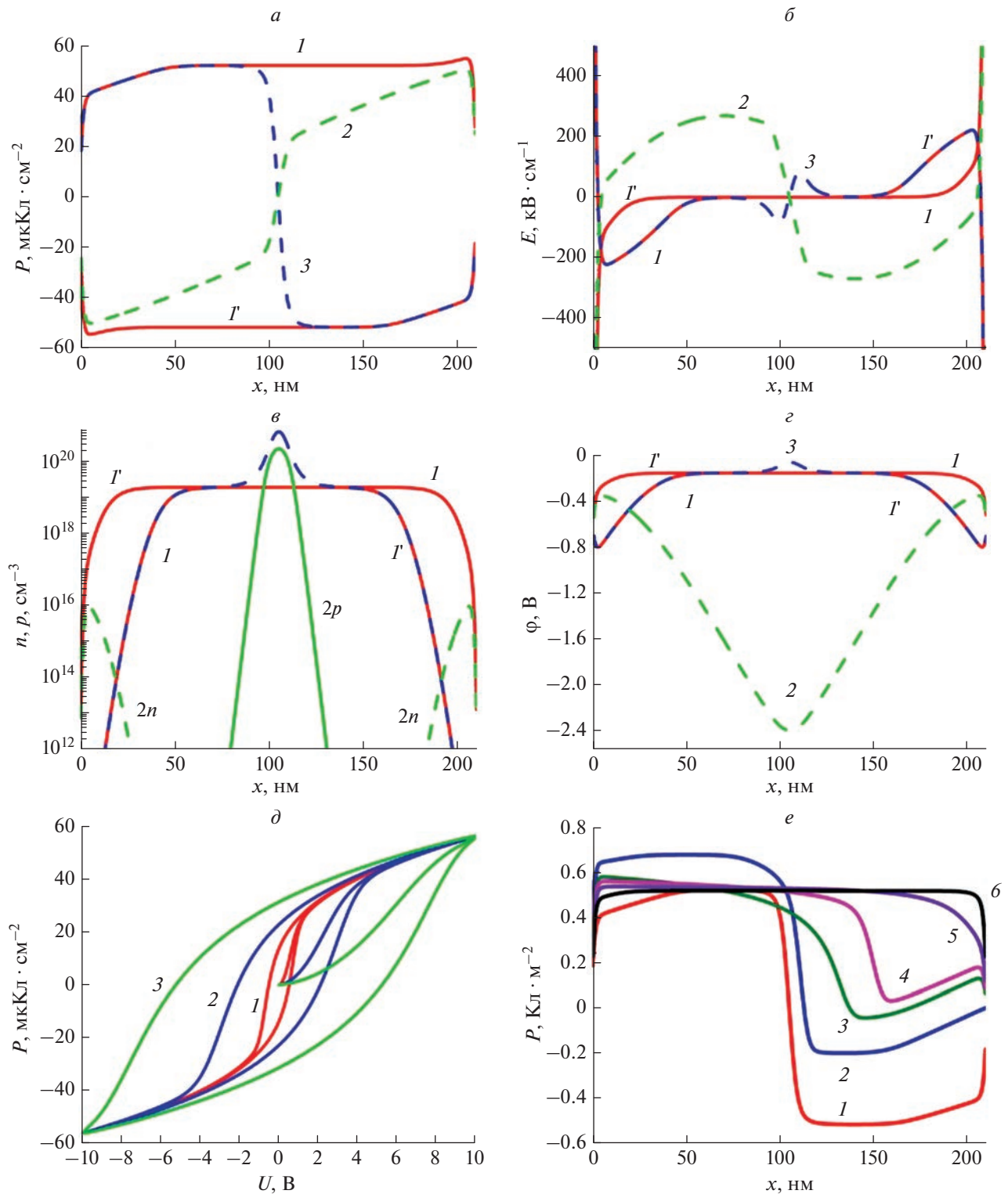


Рис. 3. Распределения по толщине пленки поляризации (а), электрического поля (б), плотностей электронов и дырок (в), потенциала (г) для 4 решений ЛГ модели, полученных при одних и тех же значениях параметров М/РЗТ/М структуры. Кривые: 1 – однодоменное состояние, 2 – пара ТТ доменов, 3 – пара НН доменов. Петли гистерезиса (д), возникающие в пленке с ТТ доменами при частотах приложенного напряжения: кривая 1 – 10, 2 – 100, 3 – 500 Гц. (е) Распределения поляризации в пленке в различные моменты времени в процессе преобразования НН доменов в однодоменное состояние под действием прямоугольного импульса напряжения. Кривые: 1 – $t = 0$ с, 2 – 0.0625; 3 – 0.25; 4 – 0.5; 5 – 1.0; 6 – 2.5.

к уровню Ферми, что вызывает генерацию дырок. Свободная энергия пленки с учетом (3) равна

$$\tilde{F} = \varphi(P + \varepsilon_0 \varepsilon_b E) / 2 \Big|_{x=0}^{x=L} - \int_0^L q \varphi (N_{vac}^S - n + p) dx - \int_0^L (\alpha_2^* P^4 + 2\alpha_3^* P^6) dx. \quad (4)$$

Для 210 нм пленки однодоменное поляризационное состояние остается энергетически более выгодным вплоть до концентрации вакансий 10^{26} м^{-3} , тогда как НН and ТТ домены являются метастабильными. Свободная энергия пленки с НН доменами не зависит от плотности вакансий N_{vac} . При этом, НН домены существуют даже при столь малых N_{vac} как 10^{21} м^{-3} . Свободная энергия пленки с ТТ доменами уменьшается с увеличением N_{vac} и при $N_{vac} > 2 \cdot 10^{26} \text{ м}^{-3}$ ТТ домены становятся энергетически более выгодными, хотя в действительности возникает пара узких ТТ доменов вблизи одного из контактов, а остальная часть пленки остается однодоменной. Что же касается НН доменов, то при $N_{vac} > 2 \cdot 10^{26} \text{ м}^{-3}$ образуется комбинация НН and ТТ доменов.

НЕСТАЦИОНАРНЫЕ ЭФФЕКТЫ

Исследовано поведение НН и ТТ доменов под воздействием приложенного внешнего импульса синусоидального и прямоугольного напряжения амплитудой 10 В. В первом случае оказалось, что в пленке с НН доменами гистерезис практически отсутствует, а в пленке с ТТ доменами петля гистерезиса возникает и ее размер увеличивается с ростом частоты приложенного напряжения и уменьшается с увеличением плотности вакансий (рис. 3д). Отсюда, может возникнуть впечатление, что пленка с ТТ доменами способна к переключению, однако, после выключения напряжения остаточная поляризация быстро исчезает с постоянной времени, пропорциональной τ . Показано, что для прямоугольного импульса преобразование ТТ доменов к однодоменному состоянию не удастся, а для НН доменов это возможно, если длительность импульса превосходит некоторое значение, которое для плотности вакансий $2 \cdot 10^{25} \text{ м}^{-3}$ равно $\sim 0.2 \text{ с}$. На рис. 3е показано превращение НН доменов в однодоменное состояние при длительности импульса 0.25 с. Видно, что однодоменное состояние устанавливается практически через 2.5 с. Однако, как показывают расчеты, окончательное стационарное состояние достигается лишь через несколько часов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенные расчеты показали, что обе модели позволяют получить пики тока и связывают их

возникновение с формированием вблизи одного из контактов обогащенного слоя объемного заряда. Однако, поскольку граничные условия (3б) для уравнения поляризации не позволяют обеспечить около контакта столь же резкого изменения электрического поля, как в случае дефектных слоев, модель Гинзбурга–Ландау дает худшее совпадение с экспериментальной ВАХ. Показано, что при одних и тех же параметрах М/РЗТ/М структуры ЛГ модель имеет несколько решений, одно из которых описывает однодоменное состояние, а другие — НН и ТТ домены и их комбинацию. Показано, что М/РЗТ/М структуры с заряженными стенками не переключаются. В то же время НН домены могут трансформироваться в однодоменное состояние под действием прямоугольного импульса достаточно большой длительности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Liu T., Wallace M., Troler-mcKinstry S., Jackson T.N. // J. Appl. Phys. 2017. V. 122. No. 16. Art. No. 164103.
2. Cornelius T.W., Mocuta C., Escoubas S. et al. // J. Appl. Phys. 2017. V. 122. No. 16. Art. No. 164104.
3. Scott J.F., Melnik B.M., Cuchiario J.D. et al. // Int. Ferroelectr. 1994. V. 4. No. 1. P. 85.
4. Dawber M., Scott J.F. // J. Phys. Cond. Matter. 2004. V. 16. No. 49. Art. No. L515.
5. Pintilie L., Alexe M. // J. Appl. Phys. 2005. V. 98. No. 12. Art. No. 124103.
6. Alkoy E.M., Shiosaki T. // Thin Solid Films. 2007. V. 516. No. 12. P. 516.
7. Zhu W., Ren W., Xin H. et al. // J. Adv. Dielectr. 2013. V. 3. No. 2. Art. No. 1350011.
8. Podgorny Y., Vorotilov K., Sigov A. // Appl. Phys. Lett. 2014. V. 105. No. 18. Art. No. 182904.
9. Barala S.S., Roul B., Banerjee N. et al. // J. Appl. Phys. 2016. V. 120. No. 11. Art. No. 115305.
10. Podgorny Y., Vorotilov K., Sigov A. // AIP Advances. 2016. V. 6. No. 9. Art. No. 095025.
11. Simmons J.G. // Phys. Rev. Lett. 1965. V. 15. No. 25. P. 967.
12. Filip L.D., Pintilie L. // Eur. Phys. J. B. 2016. V. 89. No. 2. P. 44.
13. Делимова Л.А., Гущина Е.В., Юфеев В.С. и др. // ФТТ. 2014. Т. 56. № 12. С. 2366; Delimova L.A., Gushchina E.V., Yuferev V.S. et al. // Phys. Solid State. 2014. V. 56. No. 12. P. 2451.
14. Delimova L.A., Gushchina E.V., Seregin D.S. et al. // J. Appl. Phys. 2017. V. 121. No. 22. Art. No. 224104.
15. Robertson J., Warren W.L., Tuttle A. et al. // Appl. Phys. Lett. 1993. V. 63. No. 11. P. 1519.
16. Warren W.L., Robertson J., Dimos D.D. et al. // Ferroelectrics. 1994. V. 153. No. 1. P. 303.
17. Delimova L.A., Yuferev V.S. // J. Appl. Phys. 2018. V. 124. No. 18. Art. No. 184102.
18. Delimova L.A., Yuferev V.S. // J. Phys. Conf. Ser. 2019. V. 1400. No. 5. Art. No. 055003.

19. Haun M.J., Zhuang Z.Q., Furman E. et al. // *Ferroelectrics*. 1989. V. 99. No. 1. P. 45.
20. Yudin S.P., Panchenko T.V., Kudzin A.Yu. // *Ferroelectrics*. 1978. V. 18. No. 1. P. 45.

Charge carrier transport and polarization in M/PZT/M structures

L. A. Delimova^{a, *}, V. S. Yuferev^a

^a *Ioffe Physical-Technical Institute of the Russian Academy of Sciences, Saint-Petersburg, 194021 Russia*

^{*}*e-mail: ladel@mail.ioffe.ru*

A model of non-stationary charge carrier transport in M/PZT/M ferroelectric structures has been developed. It is assumed that, at room temperature, electrons generated by oxygen vacancies are captured by Ti^{+3} levels and move between them under the action of electric fields caused by the external bias and polarization. The polarization distribution in a PZT film is described with varying degrees of complexity, from a constant value outside the defect layers to one determined by the equation following from the Landau–Ginzburg theory. The numerical simulation performed made it possible to explain the reasons and conditions for the appearance of current–voltage characteristics with unusual current peaks, to show the existence of several solutions in the Landau–Ginzburg model for a film with Schottky barriers, and to reveal the response of charged domain walls to an applied voltage.

УДК 537.226

AB INITIO ИССЛЕДОВАНИЕ ЭЛЕКТРОННЫХ СВОЙСТВ ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ BaTiO_3/Si

© 2023 г. А. Э. Загидуллина¹, *, И. И. Гумарова¹, А. А. Евсеев¹, Р. Ф. Мамин¹

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
Казанский (Приволжский) федеральный университет, Казань, Россия

*E-mail: zanalina060200@gmail.com

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Представлены *ab initio* расчеты гетероструктуры на основе титаната бария в сегнетоэлектрической фазе и кремния. Рассмотрены спектры плотности состояний для различных конфигураций гетероструктуры, из которых следует возможность создания проводящего состояния в системе, состоящей из непроводящих компонент.

DOI: 10.31857/S0367676522701009, EDN: NPGSRY

Интеграция перовскитных оксидов (ABO_3) на кремний (Si) открыла новую эру оптоэлектроники на основе оксидов [1]. В отличие от большинства полупроводников, сложная структура этих оксидов, а также наличие *d*-оболочки у некоторых В-катионов, например, Ti, придают этим материалам внутренние степени свободы, которые обеспечивают широкий спектр физических явлений. Гетероструктуры с перовскитами в качестве компонент также открывают широкие возможности для ленточной инженерии, чему способствует близкое соответствие решетки многих материалов этого класса, а также их замечательная способность выдерживать относительно высокие уровни деформации.

Основное преимущество использования сегнетоэлектриков заключается в возможности управления свойствами металлической фазы с помощью внешнего электрического поля [2, 3]. Кроме того, сегнетоэлектрики обладают рядом других выдающихся свойств, которые могут расширить сферу применения в наноразмерных электронных устройствах: спонтанное переключение поляризации, высокая диэлектрическая проницаемость, нелинейность диэлектрика, пьезо- и пироактивность, линейные и квадратичные электрооптические эффекты.

Одним из самых известных и широко изученных сегнетоэлектриков является BaTiO_3 (ВТО). Несмотря на более чем 70-летние непрерывные исследования, титанат бария по-прежнему привлекает большое внимание благодаря использованию его в качестве модели сегнетоэлектриче-

ской системы, а также в качестве компонента материалов для конденсаторов, бессвинцовых пьезоэлектрических устройств, керамики и композитов для хранения энергии [4, 5]. Причины такого успеха многообразны: (1) простой состав и структура; (2) высокая стабильность и простота адаптации свойств к конкретному применению путем легирования, образования твердых растворов с другими перовскитами; (3) относительно простая и дешевая обработка, особенно в случае керамики; (4) отсутствие эффективных конкурентов в основных приложениях [6].

BaTiO_3 (ВТО) является многообещающим материалом для изготовления электрооптических (ЭО) модуляторов из-за большого эффективного коэффициента Поккельса, особенно в эпитаксиальной форме. Недавно впервые сообщили об электрооптических свойствах эпитаксиальных пленок BaTiO_3 на SrTiO_3/Si [7]. Было показано, что BaTiO_3 демонстрирует гораздо более высокий эффективный коэффициент Поккельса, по крайней мере в пять раз больше, чем у LiNbO_3 . Будучи сегнетоэлектриком, ВТО имеет уникальное кристаллографическое направление, в котором указывается сегнетоэлектрическая поляризация. Также предлагается использовать BaTiO_3 интегрированный в Si в качестве модуляторов для кремниевой фотоники, поскольку сам кремний обладает высоким энергопотреблением [8].

Методы интеграции ВТО на кремниевую подложку достаточно широко исследованы многими учеными [9–15]. Упомянуты следующие мето-

ды: молекулярно-лучевая эпитаксия, импульсное лазерное осаждение, атомно-слоевое осаждение, а также осаждение из химического раствора.

Малое количество работ в области теоретических исследований гетероструктуры BaTiO_3/Si создало цель данной работы. Рассмотрена гетероструктура с разным количеством сегнетоэлектрических слоев, с приложенной сегнетоэлектрической поляризацией, а также в присутствии кислородной вакансии в слоях TiO_2 .

Настоящая работа содержит *ab initio* расчеты, основанные на теории функционала плотности [16]. Обменно-корреляционные эффекты учитывались с помощью приближения обобщенного градиента (GGA), параметризованного Пердью, Берке и Эрнцерхофом (PBE) [17].

Уравнения Кона–Шэма были решены с помощью базиса плоских волн (PAW) [18], реализованных в программе VASP [19, 20]. Ограничение по энергии составило 400 эВ, остаточные силы – 0.05 эВ/Å и сходимость по энергии – равной 10^{-5} эВ. Зона Бриллюэна разделена с использованием сеток $3 \times 3 \times 1$, $5 \times 5 \times 1$. Расчеты были выполнены с использованием метода GGA + U , для апробации которого был введен дополнительный параметр для $3d$ орбиталей Ti при оптимизации и расчете электронных свойств всех гетероструктур BaTiO_3/Si .

Гетероструктуры были смоделированы с различным количеством накладываемых слоев BaTiO_3 с интерфейсным слоем TiO_2 по направлению к центральной пластине и поверхностным концом BaO также с обеих сторон. Модель, используемая в настоящем исследовании, гарантирует неполярную структуру без каких-либо искусственных диполей. Кроме того, чтобы избежать нежелательного взаимодействия поверхностей с их периодическими копиями, была добавлена область вакуума.

На первом этапе были рассмотрены объемные структуры кремния и титаната бария в тетрагональной фазе. Произведены оптимизации ячеек и рассчитаны плотности состояний. Было подтверждено, что оба соединения являются полупроводниками с непрямой запрещенной зоной 0.615 и 2.113 эВ для Si и ВТО соответственно. Были рассмотрены и другие фазы титаната бария, однако именно тетрагональная представляет интерес, из-за наличия в ней сегнетоэлектрической поляризации при комнатной температуре, потому дальнейшее построение гетероструктуры было произведено с использованием этой фазы.

Для создания гетероструктуры ВТО/Si были сравнены параметры решеток данных соединений. Для титаната бария $a = 3.998$ Å, для кремния – 5.469 Å. Из-за существенной разницы в парамет-

рах ячейки, $\epsilon = 27\%$, для интеграции титаната бария на кремниевую подложку, решетка ВТО была повернута на 45 градусов вокруг оси Z. Дальнейшие несоответствие решеток составило $\epsilon = 4.2\%$, что приемлемо для моделирования эпитаксиального роста ВТО на Si. Оптимизированная гетероструктура с 5 слоями титаната бария показана на рис. 1а, также были созданы структуры с 2, 3, 4 слоями ВТО. Все полученные спектры плотности состояний, изображенные на рис. 1б, говорят о переходе в проводящее состояние при любом рассмотренном количестве слоев сегнетоэлектрика. Было получено, что основной вклад в проводимость (ненулевая плотность состояний на уровне Ферми) соответствует электронным состояниям атомов Ti, но присутствует также вклад от атомов Si и O.

На рис. 1а видно, что в гетероструктуре присутствуют структурные искажения, связанные со смещением атомов титана извне кислородных плоскостей. В результате этих смещений возникает сегнетоэлектрическая поляризация, направленная к поверхности гетероструктуры. Зависимость послойного смещения Ti относительно кислородной плоскости в каждой из гетероструктур представлена на рис. 2. Для гетероструктур с большим количеством слоев (толщиной пленки) смещение титана относительно кислородной плоскости возрастает. По мере приближения к интерфейсу смещение, и, как следствие, поляризация увеличивается, аналогично выводам работы [1].

При рассмотрении спектров плотности состояний послойно для гетероструктуры, содержащей 5 слоев сегнетоэлектрика, были выявлены некоторые особенности:

- в проводимости участвуют все атомарные слои сегнетоэлектрической пленки;
- для сегнетоэлектрической пленки максимальный вклад в проводимость соответствует атомам титана, причем максимальный вклад – на поверхностном слое;
- для подложки максимальный вклад в проводимость соответствует интерфейсу, далее DOS на уровне Ферми асимптотически спадает к центру гетероструктуры.

Для исключения влияния поверхности на интерфейсные свойства гетероструктуры была построена периодическая ячейка без добавления области вакуума, представленная на рис. 3а. Спектр плотности состояний качественно напоминает спектр, построенный для гетероструктуры с вакуумом (с поверхностью): основной вклад в проводимость вносят атомы Ti, вдвое меньший – Si, также присутствует незначительный вклад от O. Последнее – очевидно ввиду избавления от поверхности. Зависимость плотности состояний на уровне Ферми

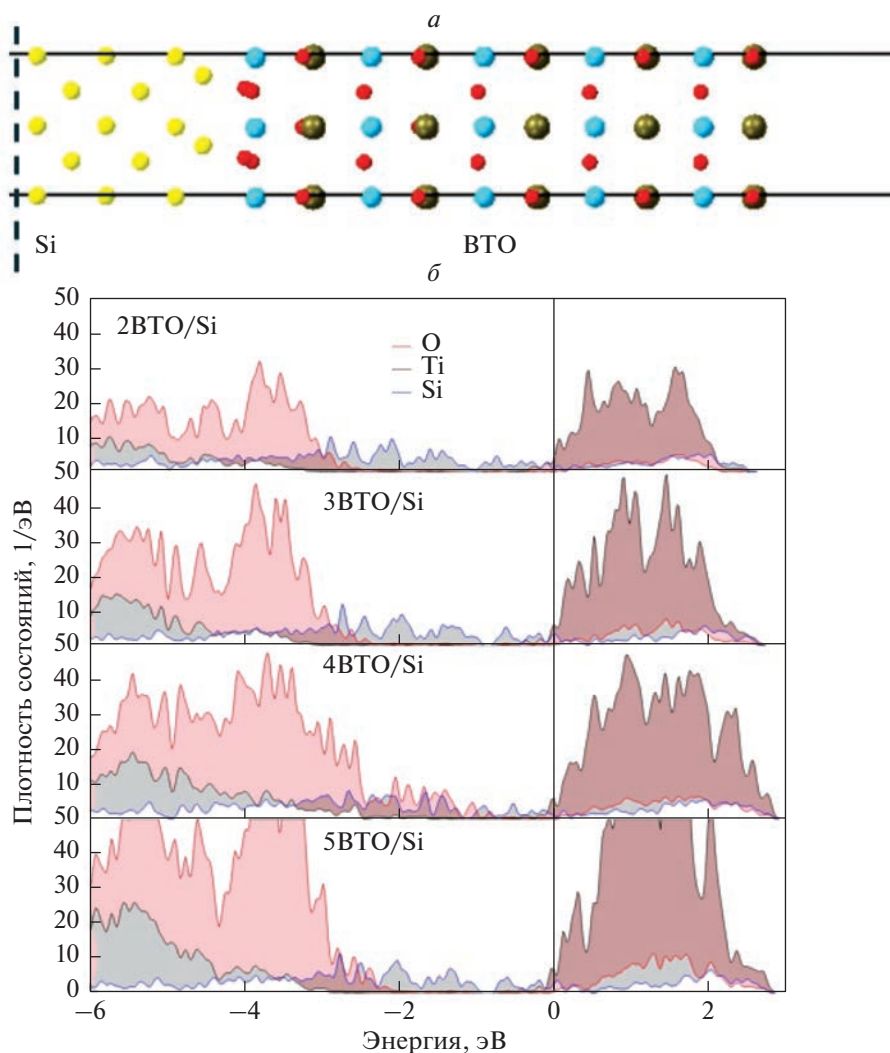


Рис. 1. Половина суперячейки гетероструктуры BaTiO_3/Si , использованной в расчетах, содержащей 5 слоев сегнетоэлектрика. Пунктирной линией обозначена середина ячейки. Вторая половина является зеркальной копией. Желтые сферы обозначают атомы кремния, голубые – титана, красные – кислорода, коричневые – бария. Ниже, спектры плотности состояний для гетероструктуры $n\text{BaTiO}_3/\text{Si}$, где n – число слоев.

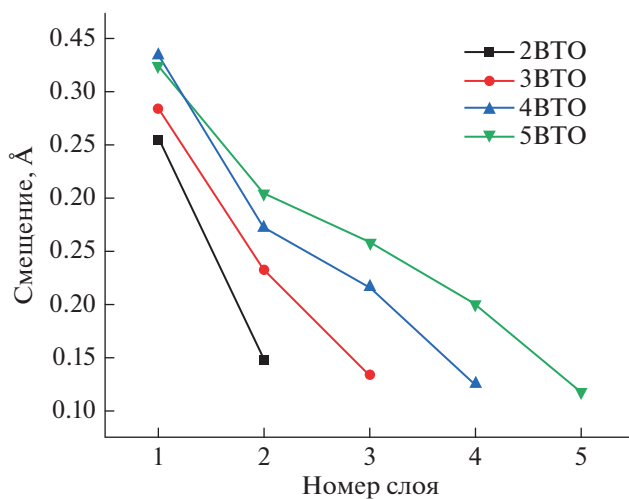


Рис. 2. Зависимость относительного смещения атомов Ti и кислородных плоскостей в слоях BaTiO_3 от номера слоя. Первый слой соответствует поверхности гетероструктуры. Зависимости представлены для гетероструктур, содержащих разное количество слоев сегнетоэлектрика $n\text{BaTiO}_3/\text{Si}$, где n – число слоев, равное 2–5.

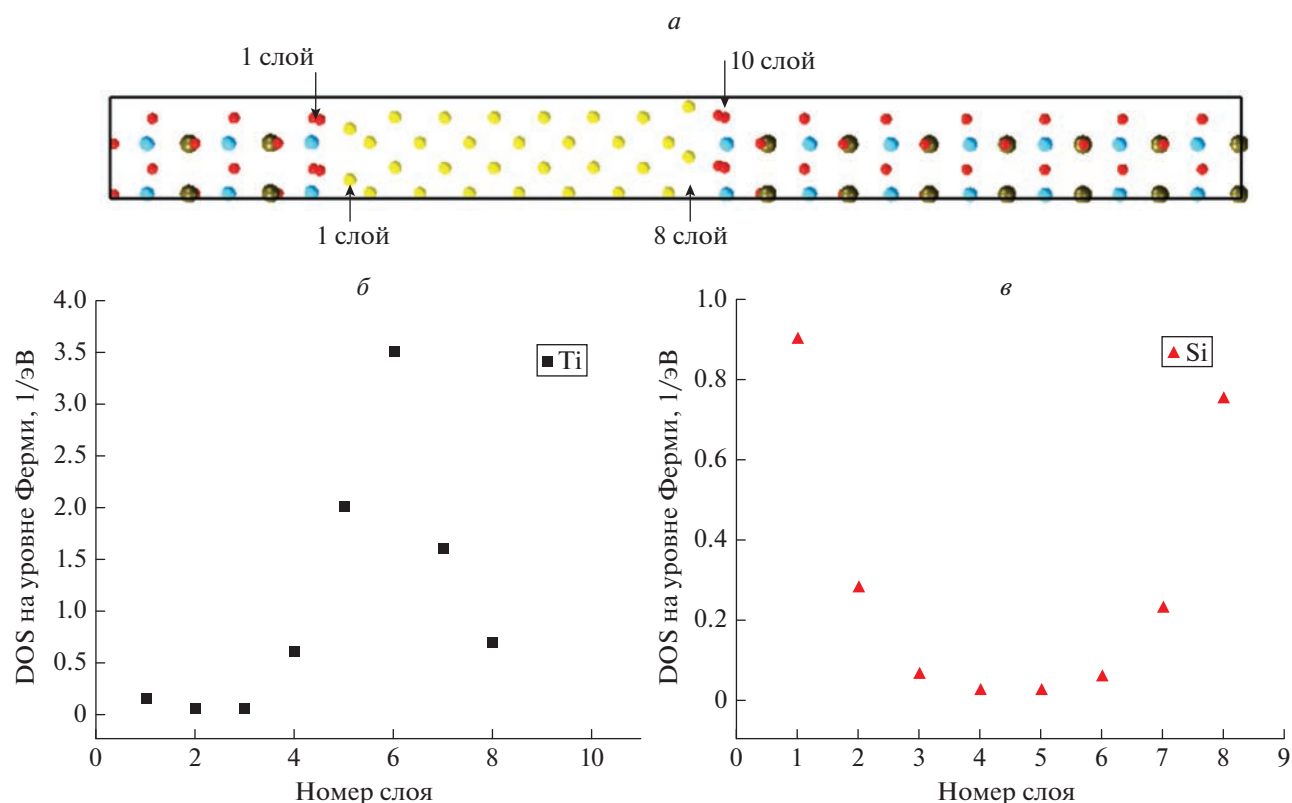


Рис. 3. Вид суперячейки без области вакуума (а). Зависимости плотности состояний на уровне Ферми для атомов Ti (б) и Si (в) от номера слоя.

от номера атомарно слоя представлена на графиках для сегнетоэлектрических слоев и подложки соответственно на рис. 3б и 4в. Для ВТО максимум проводимости приходится на центр сегнетоэлектрической пленки. Для подложки из кремния проводимость симметрично спадает при продвижении вглубь от интерфейса, к центру подложки.

В настоящей работе были проведены *ab initio* расчеты структур объемных BaTiO_3 и Si, построены модели гетероструктуры BaTiO_3/Si , содержащей различное число слоев сегнетоэлектрика. На основе расчетов зонной структуры была продемонстрирована возможность возникновения проводящего состояния в гетероструктуре ВТО/Si, изучено влияние толщины сегнетоэлектрической пленки на структурные и электронные свойства, произведен анализ вклада в проводимость от отдельных атомарных слоев.

Работа выполнена за счет средств Программы стратегического академического лидерства ("Приоритет–2030") Казанского (Приволжского) федерального университета.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Demkov A., Ortmann E., Reynaud M. et al. // Phys. Stat. Sol. B. 2021. V. 258. Art. No. 2000497.
2. Niranjana M.K., Wang Y., Jaswal S.S., Tsymlal E.Y. // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 103. Art. No. 016804.
3. Fredrickson K.D., Demkov A. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. Art. No. 115126.
4. Yao Z.H., Song Z., Hao H. et al. // Adv. Mater. 2017. V. 29. Art. No. 1601727.
5. Palneedi H., Peddigari M., Hwang G-T. et al. // Adv. Funct. Mater. 2018. V. 28. Art. No. 1803665.
6. Buscaglia V., Buscaglia M., Canu G. // In: Encyclopedia of materials: Technical ceramics and glasses. 2021. V. 3. P. 311.
7. Guo W., Posadas A., Demkov A., Vac J. // Sci. Technol. 2021. V. 39. Art. No. 030804.
8. Li W., Lee J., Demkov A. // Appl. Phys. 2022. V. 131. Art. No. 054101.
9. McKee R., Walker F., Chisholm M. // Phys. Rev. Lett. 1998. V. 81. P. 3014.
10. McKee R., Walker F., Chisholm M. // Science. 2001. V. 293. P. 468.
11. Kim D., Kwok H. // Appl. Phys. Lett. 1995. V. 67. P. 1803.
12. Appleby D., Ponon N., Kwa K.S.K. et al. // Appl. Phys. 2014. V. 116. Art. No. 124105.
13. Niu G., Yin S., Saint-Girons G. et al. // Microelectron. Engin. 2011. V. 88. P. 1232.
14. McDaniel M., Ngo T.Q., Hu S. et al. // Appl. Phys. Rev. 2015. V. 2. Art. No. 041301.

15. Edmondson B., Kwon S., Ortmann J.E. et al. // J. Amer. Ceram. Soc. 2019. V. 103. P. 1209.
16. Kohn W., Becke A., Parr R. // J. Phys. Chem. 1996. V. 100. No. 31. Art. No. 12974.
17. Perdew J., Burke K., Ernzerhof M. // Phys. Rev. Lett. 1996. V. 77. Art. No. 18. P. 3865.
18. Blochl P. // Phys. Rev. B. 1994. V. 50. Art. No. 24. Art. No. 17953.
19. Kresse G., Furthmuller J. // Phys. Rev. B. 1996. V. 54. P. 11 169.
20. Kresse G., Joubert D. // Phys. Rev. B. 1999. V. 59. No. 3. Art. No. 1758.

***Ab initio* study of the heterostructure BaTiO₃/Si**

A. E. Zagidullina^a, *, I. I. Gumarova^a, A. A. Evseev^a, R. F. Mamin^a

^a Kazan Federal University, Kazan, 420008 Russia

*e-mail: zanalina060200@gmail.com

We presented *ab initio* calculations of a heterostructure based on the ferroelectric phase of barium titanate and silicon. The spectra of the density of states for various configurations of the heterostructure are considered, from which it follows that a conducting state can be created in a system consisting of nonconducting components.

УДК 537.9

ОСОБЕННОСТИ МАГНЕТИЗМА В $\text{Dy}_{1-x}\text{Ho}_x\text{MnO}_3$

© 2023 г. А. Н. Матвеева¹ *, И. А. Зобкало¹, А. Г. Пшеничная¹

¹Федеральное государственное бюджетное учреждение

“Петербургский институт ядерной физики имени Б.П. Константинова

Национального исследовательского центра “Курчатовский институт”, Гатчина, Россия

*E-mail: matveeva_an@npi.nrcki.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Кристаллические и магнитные структуры монокристаллов мультиферроиков $\text{Dy}_{1-x}\text{Ho}_x\text{MnO}_3$ ($x = 0, 0.2$) были исследованы методами дифракции нейтронов. Показано, что замещение Dy на Ho на уровне 20% не изменяет общую кристаллическую симметрию соединения. Для обоих соединений она описывается группой Pbnm вплоть до очень низких температур. Магнитное упорядочение не изменяет кристаллическую структуру. Замещение Dy на Ho подавляет спонтанное упорядочение редкоземельной подсистемы с собственным вектором распространения (0 0.5 0). Это приводит к ситуации, когда две магнитные подсистемы, марганцевая и редкоземельная, имеют когерентное несо-размерное пространственное распространение.

DOI: 10.31857/S0367676522701010, EDN: NPHPOV

ВВЕДЕНИЕ

В последнее время интерес к соединениям, в которых электрическая поляризация возникает вследствие магнитного упорядочения — “несобственным” мультиферроикам (или мультиферроикам II рода) — многократно возрос в связи с их необычными магнитоэлектрическими свойствами. Поскольку магнитные и электрические степени свободы в мультиферроиках связаны между собой, это не только приводит к новым физическим свойствам, но и дает возможность управлять ими внешними магнитными и электрическими полями, а также контролировать распространение в них электромагнитных волн [1, 2].

Соединения из семейства RMnO_3 (где $R = \text{Ho}, \text{Dy}$) являются представителями класса “несобственных” мультиферроиков. Обнаруженные в исследуемых системах существенные магнитоэлектрические взаимодействия создают предпосылки для эффективного влияния магнитного поля на фазовые переходы, предоставляют возможность магнитного контроля за эффектами электрической поляризации. Несмотря на появление большого числа работ на эту тему, микроскопическая природа как возникновения спонтанной электрической поляризации, так и влияния магнитного поля на диэлектрическую восприимчивость и электрическую поляризацию в указанных выше системах до конца не установлена.

В DyMnO_3 связь между поляризацией и циклоидальной магнитной структурой может быть удовлетворительно описана в рамках обратной модели Дзялошинского–Мория [3, 4].

Другой механизм происхождения сегнетоэлектрической поляризации в перовскитных мультиферроиках HoMnO_3 обусловлен обменной стрикцией, и для него характерен порядок типа вверх–вверх–вниз–вниз или антиферромагнитный порядок E -типа. Предсказано, что этот механизм будет генерировать гораздо большую сегнетоэлектрическую поляризацию, чем предыдущий [5–7].

Редкоземельный элемент не только определяет кристаллическую структуру, но и напрямую влияет на мультиферроизм RMnO_3 . Эксперименты показывают, что редкоземельный магнетизм, который не принимается во внимание в вышеупомянутых двух механизмах, не является пренебрежимо малым для формирования мультиферроизма в DyMnO_3 и HoMnO_3 . Эта особенность позволяет контролировать всю спиновую структуру (не только спиновую структуру марганцевой подсистемы) и настраивать мультиферроизм RMnO_3 путем замены редкоземельных ионов [8–12].

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Монокристаллы семейства $\text{Dy}_{1-x}\text{Ho}_x\text{MnO}_3$ ($x = 0, 0.2$) были выращены методом спонтанной

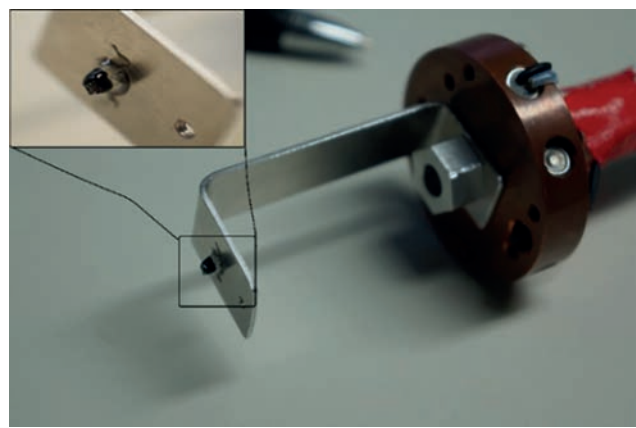


Рис. 1. Образец, закрепленный на держателе.

кристаллизации из раствора в расплаве. Для синтеза были использованы реактивы высокой степени чистоты PbO, PbF₂, MnO₂, Dy₂O₃, Ho₂O₃, B₂O₃. В качестве растворителя было использовано следующее соотношение химических реактивов PbO : PbF₂ : B₂O₃ = 0.84 : 0.14 : 0.01, а соотношение искомого состава Dy_{1-x}Ho_xMnO₃ к растворителю было 1 : 9. Технологический режим состоял из нагрева шихты в платиновом тигле до 1200°C с последующим охлаждением в течении двух недель до температуры 700°C. Полученные монокристаллы имеют вид параллелепипедов с размерами до 1.5 × 1.5 × 3 мм³. Исследуемый монокристалл черного цвета показан на рис. 1. Образец закреплен на держателе криостата.

КРИСТАЛЛИЧЕСКАЯ СТРУКТУРА
Dy_{1-x}Ho_xMnO₃ (x = 0, 0.2)

Принято считать, что для описания кристаллической структуры DyMnO₃ как при комнатной, так и при низких температурах используется орторомбическая пространственная группа *Pbnm* (62) это та же пространственная группа, что и *Pnma*

только в не стандартной установке, а в установке *cab* со структурой искаженного перовскита. Такая установка выбрана для удобства. Однако недавнее детальное исследование методом порошковой нейтронной и синхротронной дифракции с высоким разрешением при низких температурах показало понижение симметрии кристалла при низких температурах до пространственных групп *Pna2₁* или *P2₁* [13]. Чтобы проверить эти предполагаемые небольшие атомные смещения, возможно связанные с возникновением электрической поляризации в DyMnO₃, нами был выполнен набор брэгговских ядерных рефлексов при низкой температуре 2.4 К. При этой температуре в DyMnO₃ сосуществуют две магнитные структуры: несоразмерная структура с волновым вектором $\vec{k}_{Mn} = (0\ k_y\ 0)$ и соразмерная структура на редкоземельной подсистеме $\vec{k}_{Dy} = (0\ 0.5\ 0)$; температура 2.4 К была самой низкой доступной температурой измерений. Кристаллическая структура DyMnO₃ была исследована на монокристалльном дифрактометре HEIDI с длиной волны $\lambda = 0.556\ \text{\AA}$, позволяющей минимизировать поглощение на Dy. Затем уточнение кристаллической структуры было выполнено с использованием программной среды FullProf suite [14]. Согласно нашим результатам, орторомбическая пространственная группа *Pbnm* (рис. 2) хорошо описывает кристаллическую структуру DyMnO₃ при всех этих температурах. При понижении температуры изменения параметров кристаллической структуры не наблюдалось. Как положения всех атомов, так и параметры изотропного/анизотропного смещения при понижении температуры в пределах погрешности не изменяются. Полученные положения атомов для 2.4 К показаны в табл. 1. Представленные здесь параметры кристаллической структуры, полученные при низкотемпературной монокристаллической нейтронной дифракции, хорошо согласуются с параметрами, полученными для DyMnO₃ ранее другими методами, такими как по-

Таблица 1. Положение атомов в DyMnO₃ и Dy_{0.8}Ho_{0.2}MnO₃ полученные в результате уточнения кристаллических структур

	DyMnO ₃ , 2.4 К			Dy _{0.8} Ho _{0.2} MnO ₃ , 300 К			Dy _{0.8} Ho _{0.2} MnO ₃ , 4 К		
	$a = 5.269(7), b = 5.845(4), c = 7.331(4)\ \text{\AA}$			$a = 5.27(1), b = 5.840(4), c = 7.360(8)\ \text{\AA}$			$a = 5.268(3), b = 5.835(4), c = 7.358(1)\ \text{\AA}$		
атом	<i>x</i>	<i>y</i>	<i>z</i>	<i>x</i>	<i>y</i>	<i>z</i>	<i>x</i>	<i>y</i>	<i>z</i>
Dy/Ho, 4c	-0.0180(2)	0.0829(2)	0.25	-0.0169(5)	0.0820(1)	0.25	-0.0178(4)	0.0830(9)	0.25
Mn, 4b	0.5	0	0	0.5	0	0	0.5	0	0
O1, 4c	0.1088(9)	0.4622(4)	0.25	0.1083(3)	0.4640(4)	0.25	0.1093(3)	0.4622(2)	0.25
O2, 8d	0.7022(5)	0.3276(5)	0.0527(6)	0.7020(4)	0.3285(5)	0.0513(6)	0.7013(9)	0.3272(4)	0.0525(5)
$R_F = 4.49$				$R_F = 1.94$			$R_F = 1.51$		

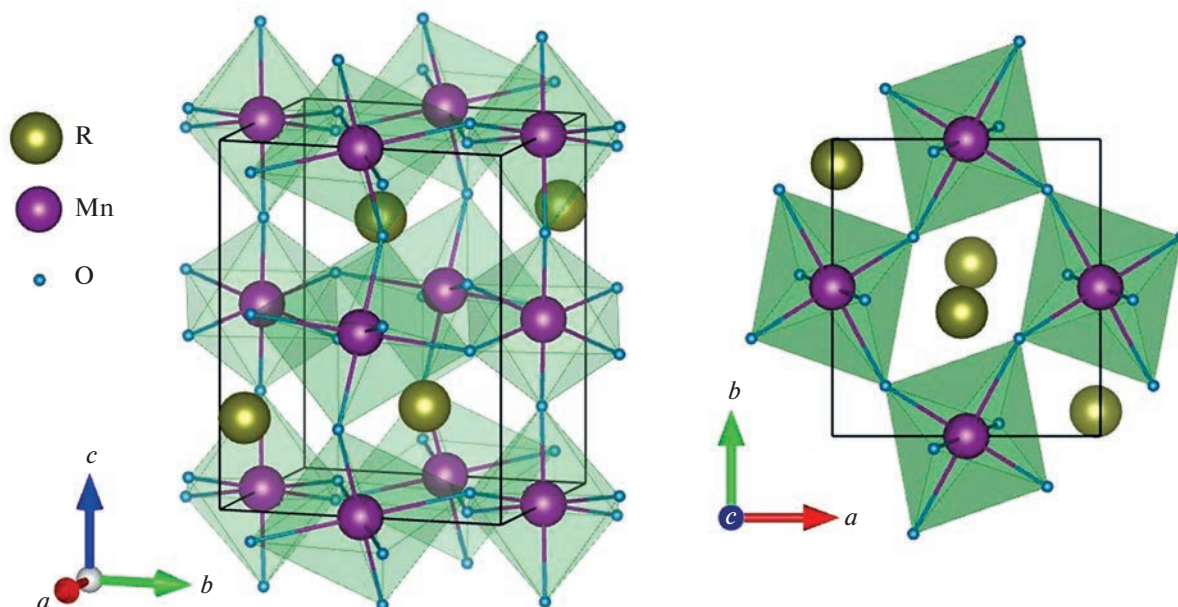


Рис. 2. Типичная искаженная кристаллическая структура перовскита RMnO_3 в пределах пространственной группы $Pbnm$.

рошковая нейтронная дифракция [13] или монокристаллическая рентгеновская дифракция [15]. Мы не обнаружили ни дополнительных брэгговских отражений, запрещенных в группе $Pbnm$, ни расщепления измеренных отражений. Мы считаем, что, скорее всего, из-за ограничений метода (более низкое разрешение из-за использования горячих нейтронов) наши результаты не смогли ни подтвердить, ни опровергнуть недавно предложенные в [13] атомные смещения и связанное с ними понижение симметрии. С другой стороны, наши результаты ясно показывают, что традиционно рассматриваемая пространственная группа $Pbnm$ по-прежнему хорошо описывает среднюю симметрию в DyMnO_3 при низких температурах в различных магнитных состояниях.

Для уточнения кристаллической структуры $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$ были измерены 542 ядерных брэгговских отражения на монокристаллическом дифрактометре POLI при длине волны $\lambda = 0.897 \text{ \AA}$ в неполяризованном режиме. Были проведены два набора данных: при комнатной температуре и при 4 К соответственно. Среди измеренных пиков для уточнения структуры было использовано 179 независимых брэгговских отражений, удовлетворяющих условию $I > 3\sigma(I)$. Полученные для замещенного соединения $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$ результаты показывают, что пространственная группа $Pbnm$ хорошо описывает его кристаллическую структуру при обеих температурах. Как и в DyMnO_3 на HEiDi, так и в $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$ на POLI были обнаружены только отражения, разрешенные в

пространственной группе $Pbnm$, и никакого расщепления в пределах разрешения дифрактометра POLI не наблюдалось. Полученные в результате уточнения атомные положения в $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$ при 300 и 4 К показаны в табл. 1. Как и в предыдущем случае для DyMnO_3 , не было обнаружено существенной разницы в параметрах элементарной ячейки, а также в координатах атомов при 300 К и при низкой температуре, ниже T_N . Как видно из табл. 1, структурные параметры для “чистого” соединения DyMnO_3 , и для замещенного соединения $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$ очень схожи. Таким образом, замещение Dy на Ho на уровне 0.2 не изменяет общую кристаллическую структуру. Предполагая, что Ho занимает ту же позицию Wyckoff, что и Dy — $4c$, и общая заселенность позиции редкоземельного элемента RE равна единице, степень замещения Dy на Ho была проверена при уточнении кристаллической структуры $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$. Полученные в результате структурного уточнения значения заселенности позиций Dy, равные 0.79(3) и Ho 0.21(3) соответственно для позиции $4c$, находятся в идеальном соответствии с ожидаемым молярным соотношением при выращивании кристаллов.

МАГНИТНАЯ СТРУКТУРА $\text{Dy}_{1-x}\text{Ho}_x\text{MnO}_3$ ($x = 0, 0.2$)

В дополнение к ядерным пикам, набор магнитных брэгговских отражений в DyMnO_3 был выполнен на дифрактометре HEiDi при темпера-

Таблица 2. Магнитные структуры DyMnO₃ и DyHoMnO₃

	T, K	Магнитный момент	Волновой вектор	Мода	M_x, μ_B	M_y, μ_B	M_z, μ_B
DyMnO ₃	2.4	Mn	$(0 k_y 0)$	$A_y A_z$	0	2.92(26)	2.77(21)
		Dy	$(0 k_y 0)$	$G_x A_y$	2.49(8)	5.57(7)	0
		Dy (CM)	$(0 0.5 0)$	$G_x A_y$	3.51(1)	6.62(6)	0
DyHoMnO ₃	4	Mn	$(0 k_y 0)$	$A_y A_z$	0	3.471(15)	0.147(13)
		Dy	$(0 k_y 0)$	$G_x A_y A_z$	1.922(15)	4.531(15)	0.950(11)
		Ho	$(0 k_y 0)$	$G_x A_y A_z$	4.786(15)	7.141(14)	4.173(12)

туре 2.4 К. Набор данных для уточнения соразмерной магнитной структуры Dy с волновым вектором $\vec{k}_{Dy} = (0 0.5 0)$ состоит из 250 отражений, в то время как набор данных для несоизмерной магнитной структуры с $\vec{k}_{Mn} = (0 0.405 0)$ состоит из 150 отражений. Представленческий анализ показывает, что для волнового вектора $\vec{k}_{Dy} = (0 0.5 0)$ позиция 4с распадается на две орбиты, имеющие одинаковые базисные вектора. Для ионов Dy³⁺ была рассмотрена комбинация двух представлений Г2 с магнитными моментами, лежащими в плоскости ab в обобщенной конфигурации $G_x A_y$. Это дает удовлетворительную сходимость подгонки с $\chi^2 = 8,4$ и результирующим значением магнитного момента $\vec{M}_{Dy} = (3.51(1), 6.62(6), 0) \mu_B$ (см. табл. 2, рис. 3), что полностью соответствует

результатам [13, 16], полученным с помощью нейтронной порошковой дифракции.

Что касается уточнения несоизмерной магнитной структуры при 2.4 К, то для первых попыток была выбрана модель для уточнения, состоящая только из подрешетки Mn, предполагая, что подсистема Dy не вносит никакого вклада в несоизмерный порядок. Для позиции Mn 4b представление Г4b разлагается на четыре неприводимых представления Г1, Г2, Г3, Г4. Упорядочение марганцевых спинов рассматривалось как комбинация двух неприводимых представлений Г2 и Г3 с конфигурацией $A_y A_z$, как это было предложено ранее [13, 17]. Однако это не привело к убедительному результату с точки зрения сходимости подгонки. На следующем шаге мы также включили подрешетку Dy³⁺ в подгонку, предполагая, что существует остаточная подмагниченность диспрозиевой магнитной подсистемы со стороны марганцевой. Для $\vec{k}_{Mn} = (0 k_y 0)$, $k_y \neq 0.5$ представленийческий анализ показывает, что позиция 4с распадается на две орбиты, аналогично случаю волнового вектора $\vec{k}_{Dy} = (0 0.5 0)$. Таким образом, было добавлено магнитное упорядочение Dy³⁺ с конфигурацией $G_x A_y$. Для эллиптической циклоиды это обеспечило хорошую сходимость подгонки с $\chi^2 = 2.71$ и результирующими значениями магнитных моментов: $M_{Mn} = (0, 2.92(26), 2.77(21)) \mu_B$ и $M_{Dy} = (2.49(8), 5.57(7), 0) \mu_B$ (табл. 2, рис. 4а).

Набор данных для уточнения магнитной структуры в Dy_{0.8}Ho_{0.2}MnO₃ был произведен на дифрактометре POLI с длиной волны $\lambda = 0.897 \text{ \AA}$ в неполяризованном режиме с использованием подъемного детектора (детектора, который можно позиционировать в горизонтальной и вертикальной плоскости). Около 150 отражений, соответствующих несоизмерному волновому вектору $k_{Mn} = (0 0.38 0)$, были измерены при 4 К. Поскольку было установлено, что кристаллическая структура Dy_{0.8}Ho_{0.2}MnO₃ такая же, как и у DyMnO₃, то теоретико-групповой анализ, сделанный для DyMnO₃, также может быть применен к Dy_{0.8}Ho_{0.2}MnO₃. Как и в случае с DyMnO₃, была

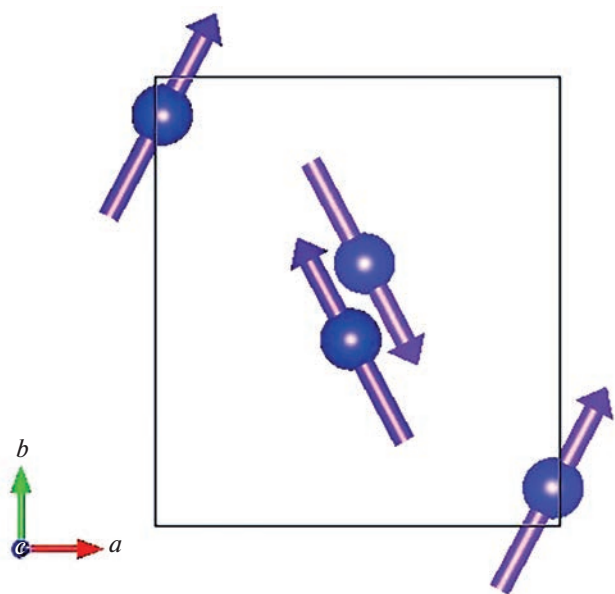


Рис. 3. Модель магнитной структуры DyMnO₃, показан только соразмерный антиферромагнитный порядок на атомах Dy при 2.4 К.

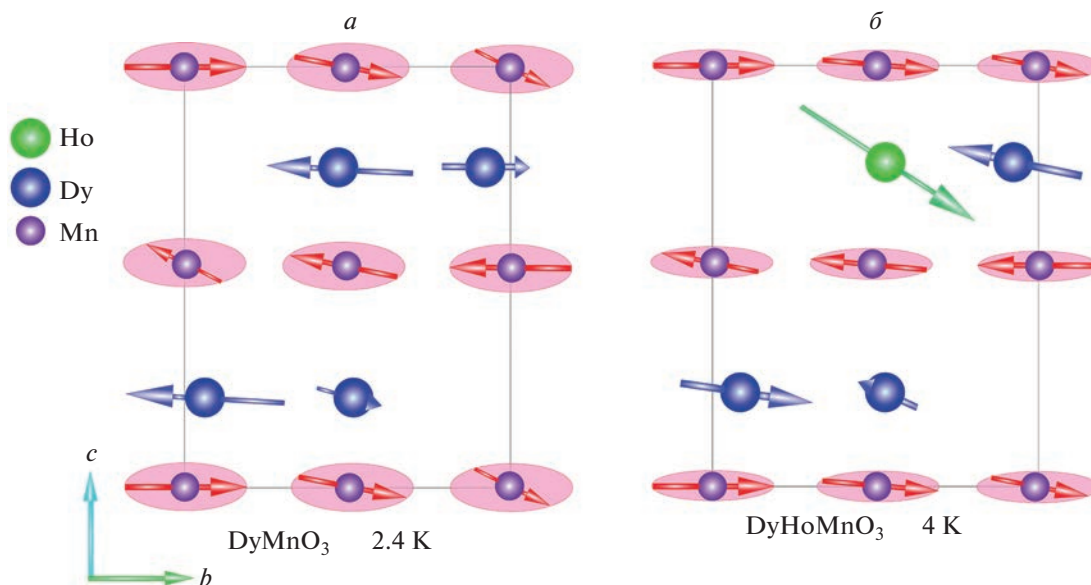


Рис. 4. Модели несоразмерных магнитных структур DyMnO_3 и DyHoMnO_3 .

использована модель эллиптической циклоиды для уточнения магнитной структуры в соединении $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$. Представление $\Gamma_2 + \Gamma_3$, используемое для марганцевой системы, было использовано также для подсистемы RE. Магнитный порядок Mn конфигурации $A_y A_z$ и магнитный порядок на редкоземельных ионах $G_x A_y A_z$ дают удовлетворительную сходимость подгонки с $\chi^2 = 2.83$ в отличие от $\chi^2 = 7.11$, полученного только для конфигурации $G_x A_y$ на редкоземельных ионах. Уточненные значения магнитных моментов составляют: $M_{\text{Mn}} = (0, 3.471(15), 0.147(13)) \mu_B$, $M_{\text{Dy}} = (1.922(15), 4.531(15), 0.950(11)) \mu_B$, $M_{\text{Ho}} = (4.786(15), 7.141(14), 4.173(12)) \mu_B$ (см. табл. 2, рис. 4б). По сравнению с DyMnO_3 , y -составляющая магнитного момента на ионе Mn лишь немного меньше, в то время как c -составляющая значительно уменьшается в $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$. Меньшее значение магнитного момента Mn можно объяснить влиянием легирования Ho в RE подсистеме, возмущающее влияние которого возрастает с понижением температуры. Магнитные моменты ионов Dy^{3+} имеют значение несколько меньшее, чем значение, полученное для DyMnO_3 при низких температурах. Значение момента Ho^{3+} в $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$ ($8.27 \mu_B$) немного выше, чем те, о которых сообщается в литературе для чистого HoMnO_3 : $7.27 \mu_B$ [16], $7.7 \mu_B$ [17] и ближе к значению свободного иона $10 \mu_B$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнено сравнительное исследование магнитного упорядочения в монокристаллах незаме-

щенного DyMnO_3 и замещенного DyHoMnO_3 с уровнем легирования 0.2 с использованием методов дифракции нейтронов. Предварительно с помощью дифракции нейтронов на монокристаллах была определена кристаллическая структура образцов при комнатной температуре ($\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$) и при низких температурах (DyMnO_3 , $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$). Наши результаты показывают, что кристаллическая структура, полученная для чистого и замещенного соединения, как при низких температурах, так и при комнатной температуре описывается орторомбической пространственной группой $Pbnm$. Уточненные структурные параметры DyMnO_3 при температуре 2.4 К, такие как параметры решетки и атомные координаты представлены в табл. 1. Впервые представлены структурные параметры частично замещенного соединения $\text{Dy}_{0.8}\text{Ho}_{0.2}\text{MnO}_3$ как при комнатной, так и при низкой температуре (4 К). Результаты показывают, что общая кристаллическая симметрия исходного соединения с пространственной группой $Pbnm$ сохраняется и в замещенных образцах. В элементарной ячейке Ho занимает те же Wyckoff позиции, что и Dy, и параметры решетки очень похожи для обоих соединений. При низкой температуре в пределах точности измерений не наблюдалось существенного изменения симметрии, связанного с магнитным порядком.

Полученные результаты по уточнению магнитных структур показывают, что Mn образует киральную эллиптическую циклоидальную магнитную структуру в плоскости bc в соединении DyMnO_3 . Марганцевая магнитная подсистема

подмагничивает диспрозиевую так, что Dy подсистема образует киральную эллиптическую циклоидальную структуру в плоскости ab , что сохраняется вплоть до таких низких температур, как 2.4 К. В то же время, при температуре 2.4 К Dy также упорядочен в свою соразмерную магнитную структуру при $T_{N\text{Dy}} \approx 8$ К.

В образце, легированном Ho, при 4 К наблюдается киральная эллиптическая циклоидальная магнитная структура. Замещение Dy на Ho на уровне 20% подавляет спонтанное упорядочение редкоземельной подсистемы с собственным вектором распространения (0 0.5 0). Удовлетворительную сходимость подгонки удалось получить с помощью введения ненулевого магнитного момента вдоль c на редкоземельной подсистеме.

Таким образом, легирование 20% Ho в положении Dy преобразует магнитную структуру и приводит к ситуации, когда две магнитные подсистемы, марганцевая и редкоземельная, имеют когерентное несоразмерное пространственное распространение. Такая ситуация благоприятна для генерации сегнетоэлектрической поляризации, возникающей как из-за эффекта обратного взаимодействия Дзялошинского—Мория в подсистеме Mn, так и из-за механизмов обменной стрикции RE-Mn во всей температурной области циклоидального упорядочения.

Интересно, что не только момент на небольшом количестве легирующих примесей Ho направлен в другую сторону по отношению к направлению моментов в основной матрице Dy, но и магнитный момент на Dy направлен иначе, чем в “чистом” соединении DyMnO₃. Это означает, что замещение Ho на уровне около 20% в положении Dy дополнительно увеличивает влияние RE на подрешетку Mn, подтверждая гипотезу о том, что легирование Ho контролирует не только исключительно магнитное упорядочение RE, но и всю спиновую структуру соединения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wang K.F., Liu J.-M., Ren Z.F. // Adv. Phys. 2009. V. 58. No. 4. P. 321.
2. Пятаков А.П., Звездин А.К. // УФН. 2012. Т. 182. № 6. С. 593; Pyatakov A.P., Zvezdin A.K. // Phys. Usp. 2012. V. 55. P. 557.
3. Katsura H., Nagaosa N., Balatsky V. // Phys. Rev. Lett. 2005. V. 95. No. 5. Art. No. 057205.
4. Sergienko I.A., Dagotto E. // Phys. Rev. B. 2006. V. 73. No. 9. Art. No. 094434.
5. Sergienko I. A., Sen C., Dagotto E. // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 97. No. 22. Art. No. 227204.
6. Picozzi S., Yamauchi K., Sanyal B. et al. // Phys. Rev. Lett. 2007. V. 99. No. 22. Art. No. 227201.
7. Ishiwata S., Kaneko Y., Tokunaga Y. et al. // Phys. Rev. B. 2010. V. 81. Art. No. 100411(R).
8. Mochizuki M., Furukawa N., Nagaosa N. // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 105. No. 3. Art. No. 037205.
9. Zhang N., Dong S., Zhang G.Q. et al. // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 98. No. 1. Art. No. 012510.
10. Zhang N., Guo Y.Y., Lin L. et al. // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 99. No. 10. Art. No. 102509.
11. Zhang N., Dong S., Liu J.-M. // Front. Phys. 2012. V. 7. P. 408.
12. Lee N., Choi Y.J., Ramazanoglu M. et al. // Phys. Rev. B. 2011. V. 84. No. 2. Art. No. 020101(R).
13. Narayanan N., Graham P.J., Reynolds N. et al. // Phys. Rev. B. 2017. V. 95. No. 7. Art. No. 075154.
14. Rodriguez-Carvajal J. // Physica B. 1993. V. 192. No. 1–2. P. 55.
15. Mori T., Aoki K., Kamegashira N., Shishido T., Fukuda T. // Mater. Lett. 2000. V. 42. No. 6. P. 387.
16. Prokhnenko O., Feyerherm R., Dudzik E. et al. // Phys. Rev. Lett. 2007. V. 98. No. 5. Art. No. 057206(4).
17. Magesh J., Murugavel P., Mangalam R.V.K. et al. // J. Appl. Phys. 2015. V. 118. No. 7. Art. No. 074102.
18. Munoz A., Casais M.T., Alonso J.A. et al. // Inorg. Chem. 2001. V. 40. No. 5. P. 1020.
19. Brinks H.W., Rodriguez-Carvajal J., Fjellvag H. et al. // Phys. Rev. B. 2001. V. 63. No. 9. Art. No. 094411.

Special features of magnetism in Dy_{1-x}Ho_xMnO₃

A. N. Matveeva^{a,*}, I. A. Zobkalo^a, A. G. Pshenichnaia^a

^a Konstantinov Petersburg Nuclear Physics Institute, National Research Centre “Kurchatov Institute”, Gatchina, 188300 Russia

*e-mail: matveeva_an@pnpi.nrcki.ru

Crystal and magnetic structures of Dy_{1-x}Ho_xMnO₃ multiferroic single crystals ($x = 0, 0.2$) were investigated by the neutron diffraction methods. It is shown that the substitution of Dy by Ho at the level of 20% does not change the crystal symmetry of the compound. Description was made using the $P6_{3}mm$ group down to very low temperatures for both compounds. Within accuracy of the measurements, magnetic ordering does not change the crystal structure. Substitution of Dy by Ho suppresses spontaneous ordering of a rare-earth subsystem with a propagation vector (0 0.5 0). This leads to a situation when two magnetic subsystems, manganese and rare-earth ones, have a coherent incommensurate space propagation.

УДК 539.89:538.91

МЕХАНИЧЕСКИЙ ОТКЛИК АМОРФНОГО МЕТАЛЛИЧЕСКОГО СПЛАВА $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ ПРИ ОДНООСНОЙ ДЕФОРМАЦИИ

© 2023 г. Б. Н. Галимзянов¹, *, М. А. Доронина¹, А. В. Мокшин¹

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
“Казанский (Приволжский) федеральный университет”, Казань, Россия

*E-mail: bulatgnmail@gmail.com

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

На основе крупномасштабного моделирования молекулярной динамики исследованы механические свойства аморфного металлического сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ при температуре 300 К, связанные с деформациями одноосного сжатия и растяжения. Для данной системы определены кривые “напряжение–деформация”, а также модуль Юнга, предел текучести и предел прочности. Впервые найдено соответствие между значениями модуля Юнга и предела текучести, которое укладывается в эмпирический линейный закон, единый для металлических стекол с различным составом. Показано, что механико-прочностные свойства аморфного сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ являются более выраженными по сравнению с металлическими стеклами другого состава.

DOI: 10.31857/S0367676522701022, EDN: MCZJND

ВВЕДЕНИЕ

Нахождение аморфных металлических сплавов с требуемыми физико-механическими свойствами принадлежит к актуальным направлениям физики конденсированного состояния и материаловедения [1]. Аморфная структура придает металлическим сплавам уникальное сочетание высокой прочности, превосходной коррозионной стойкости, высокой магнитной проницаемости, высокого предела текучести и повышенной износостойкости [2]. Поэтому эти сплавы относятся к перспективным и могут использоваться в качестве материалов для изготовления хирургических инструментов, сенсоров, автомобильных компонентов, элементов радиоэлектроники. За последние десятилетия был получен значительный объем экспериментальных и симуляционных данных по свойствам аморфных металлических сплавов различного состава. Анализ этих данных, в том числе, методами машинного обучения, позволил выявить универсальные закономерности в механическом отклике этих сплавов и показать, что прочностные свойства, преимущественно, определяются основным элементом сплава [3, 4].

Из существующих экспериментальных наблюдений следует, что наиболее способным к формированию устойчивой аморфной структуры является такой металлический сплав, который представлен компонентами (атомами) различных размеров [5, 6]. С другой стороны, с ростом числа

компонент происходит усложнение диаграммы состояния сплава, что, в свою очередь, осложняет определение сосуществующих фаз и их химического состава в зависимости от заданных термодинамических условий. В производстве аморфных металлических сплавов зачастую предпочтение отдается бинарным сплавам, структура и физико-механические свойства которых относительно легче поддаются предсказанию.

Бинарный сплав $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ принадлежит к известным бинарным сплавам, способным формировать объемную аморфную фазу [7]. Пристальное внимание непосредственно к сплаву $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ стало уделяться после того, как в начале XXI в. было синтезировано объемное металлическое стекло с устойчивой аморфной структурой [8]. Аморфный сплав $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ имеет твердость ≈ 15 ГПа и предел прочности ≈ 4 ГПа, что существенно выше, чем в случае других бинарных аморфообразующих систем [9]. В то же время механический отклик этого сплава на внешнюю деформацию сжатия достаточно детально исследован, в то время как результаты испытаний на растяжение представлены в научной литературе не в полной мере. Отсутствуют какие-либо сведения, связанные с установлением соответствий между ключевыми механическими характеристиками (модулем Юнга, пределом текучести), что позволило бы проверить выполнение известных эмпирических пра-

вил, характерных для аморфных металлических сплавов [10].

Было выполнено моделирование молекулярной динамики процесса одноосного растяжения и одноосного сжатия аморфного сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$. Выполнена оценка значений таких механических характеристик, как модуль Юнга, предел текучести и предел прочности. Впервые найдено соответствие между значениями модуля Юнга и предела текучести. Показано, что это соответствие воспроизводится эмпирическим линейным законом, единым для металлических стекол разного состава.

ДЕТАЛИ РАСЧЕТОВ И ИСПОЛЬЗУЕМЫЕ МЕТОДЫ

Рассмотрена система $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$, состоящая из 13203 атомов никеля и 8093 атомов ниобия. Атомы располагаются внутри ячейки моделирования кубической формы с периодическими граничными условиями по всем направлениям. Энергия и силы межатомного взаимодействия определяются с помощью полуэмпирического потенциала Финниса–Синклера (Finnis–Sinclair) [11]:

$$U = \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{j=i+1}^N \Phi_{\alpha_i \alpha_j}(r_{ij}) + \sum_{i=1}^N \Phi_{\alpha_i}(\rho_i). \quad (1)$$

Здесь N — число атомов, r_{ij} — расстояние между атомами i и j , $\Phi_{\alpha_i \alpha_j}(r_{ij})$ — парный потенциал, $\Phi_{\alpha_i}(\rho_i)$ — функция вложенной энергии. В выражении (1) плотность электронного облака ρ_i определяется следующим образом:

$$\rho_i = \sum_{j=i+1}^N \Psi_{\alpha_i \alpha_j}(r_{ij}), \quad (2)$$

где $\Psi_{\alpha_i \alpha_j}(r_{ij})$ — функция плотности.

Атомы исходной системы располагаются в узлах кристаллической решетки кубической фазы В2 при температуре $T = 0$ К. Часть атомов ниобия случайным образом заменяется атомами никеля для получения требуемой пропорции: Ni — 62% и Nb — 38%. Полученная кристаллическая структура нагревается до температуры $T = 2500$ К при давлении $p = 1$ атм. и приводится в состояние термодинамического равновесия. При рассматриваемом давлении температура ликвидуса сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ составляет $T_l \approx 1550$ К [12, 13]. Для получения аморфного металлического стекла приготовленный жидкий расплав охлаждается со скоростью $1 \cdot 10^{12}$ К · с⁻¹ до температуры $T = 300$ К. Данная температура находится гораздо ниже температуры стеклования $T_g \approx 1020$ К [11, 13]. На всех расчетных этапах температура и давление кон-

тролируются с помощью термостата и баростата Нозе–Гувера [14].

Моделирование молекулярной динамики процесса деформации аморфных образцов осуществляется в вычислительном пакете Lammmps [15]. Образцы подвергаются одноосному растяжению и одноосному сжатию с постоянной (фиксированной) скоростью $\dot{\gamma} = 1 \cdot 10^{10}$ с⁻¹. Отметим, что скорости деформации порядка $\sim 10^{10}$ с⁻¹ достижимы на эксперименте, например, при воздействии на материал взрывной волны и при высокоскоростном столкновении с ударным снарядом [16, 17]. В рассматриваемой работе действие деформации распространяется лишь вдоль направления оси OX . Оценка величины напряжения, возникающего при растяжении и сжатии образцов, осуществляется с помощью известного выражения Ирвина–Кирквуда [18, 19]:

$$\sigma_{xx} = -\frac{1}{V} \left(\sum_{i=1}^N m_i v_{ix}^2 \right) + \sum_{i=1}^N \sum_{j \neq i}^N F_{ijx} r_{ijx}. \quad (3)$$

Здесь, V — объем системы, m — масса i -го атома; v_{ix} — x -компонента скорости i -го атома; F_{ijx} — x -компонента силы между атомами i и j , находящимися на расстоянии r_{ijx} друг от друга. Для оценки значений основных механических характеристик строится диаграмма “напряжение–деформация”. Модуль Юнга определяется из наклона линейного участка этой диаграммы, соответствующего упругой деформации:

$$E_T = \frac{\sigma_{xx}(t)}{\epsilon(t)}, \quad (4)$$

$$\epsilon(t) = \frac{L_x(t) - L_{x0}}{L_{x0}} \quad (5)$$

для случая растяжения и

$$E_C = \frac{\sigma_{xx}(t)}{\xi(t)}, \quad (6)$$

$$\xi(t) = \frac{L_{x0} - L_x(t)}{L_{x0}} \quad (7)$$

для случая сжатия. Здесь $L_{x0} = 7.3$ нм — есть длина ячейки моделирования до деформации; $L_x(t)$ — длина ячейки моделирования в момент времени t после начала деформации. Деформация образцов продолжается до их полного разрушения и составляет $\approx 20\%$ от их первоначального размера. Для статистической обработки полученных результатов проводится серия молекулярно-динамических расчетов для 10 различных аморфных образцов, приготовленных при одинаковых термодинамических условиях.

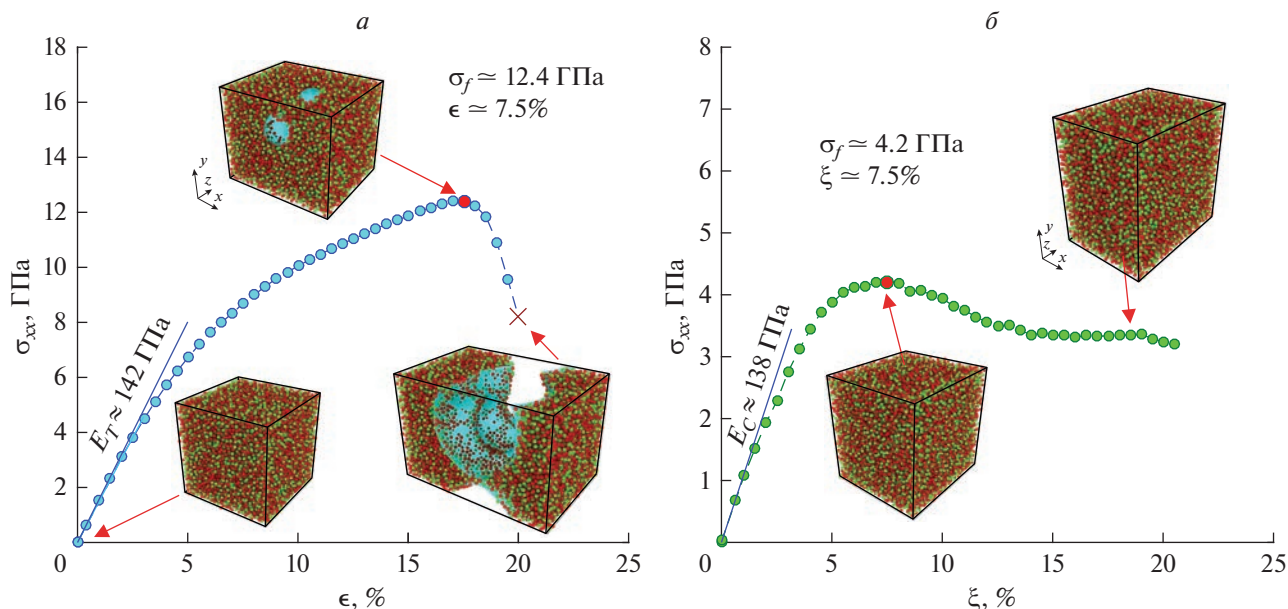


Рис. 1. Диаграмма растяжения и сжатия аморфного сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$.

МЕХАНИЧЕСКИЙ ОТКЛИК СИСТЕМЫ НА РАСТЯЖЕНИЕ И СЖАТИЕ

На основе результатов моделирования молекулярной динамики построены диаграммы растяжения и сжатия для аморфного сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$. Из рис. 1 видно, что в этих диаграммах явно проявляются области упругой и пластической деформаций. Найденные значения модуля Юнга составляют $E_T \approx 142 \pm 12$ ГПа при растяжении и $E_C \approx 138 \pm 10$ ГПа при сжатии. Эти значения являются сопоставимыми, так как в упругой области величина деформации незначительна и составляет $\sim 2\%$. Тем самым, в упругой области смещения атомов относительно друг друга также незначительны. Поэтому далее в настоящей работе мы будем полагать, что модуль Юнга для случаев растяжения и сжатия характеризуется одинаковым значением, равным $E = (E_T + E_C)/2 \approx 140 \pm 10$ ГПа. В то же время, из рис. 1 видно, что пределы прочности, при превышении которых образец начинает необратимо разрушаться, составляют $\sigma_f \approx 12.4$ ГПа (при растяжении) и $\sigma_f \approx 4.2$ ГПа (при сжатии). Для сравнения в испытаниях на сжатие аморфных стержней $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ толщиной 2 мм было установлено, что модуль Юнга $E_C^{(\text{эксп})} \approx 231$ ГПа и предел прочности $\sigma_f^{(\text{эксп})} \approx 3.1$ ГПа. Эти значения механических характеристик являются самыми высокими среди бинарных объемных металлических стекол [20]. Примечательно, что результаты моделирования приводят к заниженным значениям механических характеристик по сравнению с экспериментальными данными. Это может быть от-

части обусловлено тем, что скорости деформации образцов в моделировании и на эксперименте существенно отличаются [21, 22].

Из рис. 1а видно, что в диаграмме растяжения переход из упругой к пластической деформации является слабо выраженным, а именно, в диаграмме отсутствует “площадка текучести”, типичная для большинства металлических сплавов, где напряжение слабо зависит от деформации [23]. Отсутствие площадки текучести в рассматриваемой диаграмме растяжения обусловлено тем, что при переходе к режиму пластической деформации аморфная система не испытывает структурно-фазовых трансформаций. Поэтому в настоящей работе мы определяем условный (технический) предел текучести $\sigma_{y0.2}$ при 0.2% пластической деформации [24]. Найденное значение условного предела текучести $\sigma_{y0.2}$ составляет 3.0 ± 0.2 ГПа, и это значение является близким к экспериментальным значениям предела текучести σ_y , рассчитанным для других бинарных аморфных сплавов на основе Ni. Так, например, для аморфного сплава $\text{Ni}_{50}\text{Nb}_{50}$ предел текучести $\sigma_y = 2.26$ ГПа [25], для системы $\text{Ni}_{61}\text{Ta}_{39}$ — $\sigma_y = 3.35$ ГПа [26].

Процесс разрушения аморфного сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ при растяжении начинается после формирования наноразмерных полостей со средним линейным размером ≈ 2 нм, которые становятся очагами формирования трещин (см. рис. 1а). При растяжении интенсивное формирование таких полостей начинается при деформациях более 17%. В случае сжатия при деформациях более 7%

Таблица 1. Значения механических характеристик различных металлических стекол: E – модуль Юнга, σ_y – предел текучести. Экспериментальные данные взяты из работ [10, 25]

№	Химическая формула	Модуль Юнга E , ГПа	Предел текучести σ_y , ГПа
Сплавы на основе Ni			
1	Ni ₆₂ Nb ₃₈ (МД: настоящая работа)	140 ± 10	3.0 ± 0.2
2	Ni _{39.8} Cu _{5.97} Ti _{15.92} Zr _{27.86} Al _{9.95} Si _{0.5}	117	2.32
3	Ni ₄₀ Cu ₅ Ti _{16.5} Zr _{28.5} Al ₁₀	122	2.3
4	Ni ₄₀ Cu ₆ Ti ₁₆ Zr ₂₈ Al ₁₀	111	2.18
5	Ni ₄₀ Ti ₁₇ Zr ₂₈ Al ₁₀ Cu ₅	134	2.3
6	Ni ₄₅ Ti ₂₀ Zr ₂₅ Al ₁₀	114	2.37
7	Ni ₅₀ Nb ₅₀	132	2.26
8	Ni _{52.5} Zr ₂₀ Nb ₁₅ Pd _{12.5}	145	2.71
9	Ni ₅₅ Zr ₂₀ Nb ₁₅ Pd ₁₀	146	2.71
10	Ni ₆₀ Nb ₃₅ Sn ₅	184	3.85
11	Ni ₆₀ Sn ₆ (Nb _{0.6} Ta _{0.4}) ₃₄	164	3.58
12	Ni ₆₀ Sn ₆ (Nb _{0.8} Ta _{0.2}) ₃₄	161	3.5
13	Ni ₆₀ Zr ₂₀ Nb ₁₅ Pd ₅	148	2.75
14	Ni _{62.5} Zr ₂₀ Nb ₁₅ Pd _{2.5}	150	2.81
Сплавы на основе Cu			
15	Cu ₅₀ Zr ₅₀	85	1.92
16	Cu ₅₀ Zr ₄₅ Al ₅	102	1.89
17	Cu ₅₅ Zr ₃₀ Ti ₁₀ Co ₅	130	2.31
18	Cu ₅₅ Zr ₄₀ Ga ₅	109	2.03
19	Cu _{57.5} Hf _{27.5} Ti ₁₅	103	1.94
20	Cu _{57.5} Zr ₄₀ Ga _{2.5}	105	1.91
21	Cu ₆₀ Hf ₁₀ Zr ₂₀ Ti ₁₀	101	1.95
22	Cu ₆₀ Hf ₃₀ Ti ₁₀	124	2.16
23	Cu ₆₀ Zr ₂₀ Hf ₁₀ Ti ₁₀	101	2.05
24	Cu ₆₀ Zr ₃₃ Ti ₇	96	2.16
25	Cu ₆₄ Zr ₃₆	92	2.0
Сплавы на основе Fe			
26	Fe ₆₅ Mo ₁₄ C ₁₅ B ₆	195	3.8
27	Fe ₄₈ Cr ₁₅ Mo ₁₄ C ₁₅ B ₆ Er ₂	213	4.2
28	Fe ₅₀ Cr ₁₅ Mo ₁₄ C ₁₅ B ₆	217	4.17
29	Fe ₅₃ Cr ₁₅ Mo ₁₄ Er ₁ C ₁₅ B ₆	195	4.2
30	Fe ₅₉ Cr ₆ Mo ₁₄ C ₁₅ B ₆	204	4.4
31	Fe _{60.5} Cr ₄ Mo ₁₄ C ₁₅ B ₆ Er _{0.5}	202	4.0
32	Fe ₆₁ Mn ₁₀ Cr ₄ Mo ₆ Er ₁ C ₁₅ B ₆	193	4.16
33	Fe ₆₂ Cr ₃ Mo ₁₀ P ₁₂ C ₁₀ B ₃	172	3.4
34	Fe ₆₃ Cr ₃ Mo ₁₀ P ₁₂ C ₁₀ B ₂	178	3.4
35	Fe ₆₃ Cr ₃ Mo ₁₀ P ₁₂ C ₇ B ₅	173	3.4
36	Fe ₆₃ Cr ₃ Mo ₁₀ P ₁₂ C ₈ B ₄	175	3.4
37	Fe ₆₃ Cr ₃ Mo ₁₀ P ₁₂ C ₉ B ₃	175	3.5
38	Fe ₆₃ Mo ₁₄ C ₁₅ B ₆ Er ₂	204	4.0
39	Fe ₆₄ Cr ₃ Mo ₁₀ P ₁₀ C ₁₀ B ₃	176	3.4
40	Fe ₆₆ Cr ₃ Mo ₁₀ P ₈ C ₁₀ B ₃	177	3.4
41	Fe ₆₈ Cr ₃ Mo ₁₀ P ₆ C ₁₀ B ₃	180	3.5
42	Fe ₇₆ Si _{9.6} B _{8.4} P ₆	165	3.21
43	Fe ₈₀ P ₁₃ C ₇	137	3.14

Таблица 1. Продолжение

№	Химическая формула	Модуль Юнга E , ГПа	Предел текучести σ_y , ГПа
Сплавы на основе Mg			
44	$Mg_{61}Cu_{28}Gd_{11}$	52	1.08
45	$Mg_{65}Cu_{10}Ag_5Gd_{10}Ni_{10}$	72	1.01
46	$Mg_{65}Cu_{12.5}Ag_5Gd_{10}Ni_{7.5}$	70	0.97
47	$Mg_{65}Cu_{15}Ag_5Gd_{10}Ni_5$	68	0.9
48	$Mg_{65}Cu_{17.5}Ag_5Gd_{10}Ni_{2.5}$	67	0.84
49	$Mg_{65}Cu_{20}Ag_5Gd_{10}$	65	0.82
50	$Mg_{65}Cu_{20}Y_{15}$	69	0.82
51	$Mg_{65}Cu_{25}Gd_{10}$	51	0.83
52	$Mg_{65}Cu_{25}Tb_{10}$	51	0.8
53	$Mg_{65}Cu_{25}Y_{10}$	50	0.68
54	$Mg_{65}Cu_{25}Y_8Gd_2$	52	1.03
55	$Mg_{65}Y_{10}Cu_{15}Ag_5Pd_5$	59	0.77
Сплавы на основе Ti			
56	$Ti_{32.8}Zr_{30.2}Ni_{5.3}Cu_9Be_{22.7}$	98	1.83
57	$Ti_{40}Zr_{25}Cu_{12}Ni_3Be_{20}$	94	1.78
58	$Ti_{45}Zr_{10}Pd_{10}Cu_{31}Sn_4$	95	1.97
59	$Ti_{45}Zr_{20}Be_{30}Cr_5$	106	1.72
60	$Ti_{45}Zr_{20}Be_{35}$	97	1.86
61	$Ti_{50}Cu_{20}Ni_{24}B_1Si_2Sn_3$	110	2.1
62	$Ti_{50}Cu_{23}Ni_{20}Sn_7$	85	1.3
Сплавы на основе Pd			
63	$Pd_{40}Cu_{30}Ni_{10}P_{20}$	98	1.52
64	$Pd_{40}Ni_{40}P_{20}$	108	1.74
65	$Pd_{60}Cu_{20}P_{20}$	91	1.7
66	$Pd_{64}Ni_{16}P_{20}$	92	1.55
67	$Pd_{77.5}Cu_6Si_{16.5}$	90	1.51
68	$Pd_{80}Si_{20}$	70	1.34
Сплавы на основе Zr			
69	$Zr_{41}Ti_{14}Cu_{12.5}Ni_{10}Be_{22.5}$	101	1.8
70	$Zr_{45}Cu_{39.3}Ag_{8.7}Al_7$	94	1.84
71	$Zr_{46}Cu_{37.6}Ag_{8.4}Al_8$	92	1.82
72	$Zr_{46}Cu_{46}Al_8$	96	1.67
73	$Zr_{46.75}Ti_{8.25}Cu_{7.5}Ni_{10}Be_{27.5}$	100	1.83
74	$Zr_{48}Cu_{45}Al_7$	90	1.9
75	$Zr_{52.25}Cu_{28.5}Ni_{4.75}Al_{9.5}Ta_5$	90	1.91
76	$Zr_{55}Al_{19}Co_{19}Cu_7$	102	2.2
77	$Zr_{57.5}Nb_5Cu_{15.4}Ni_{12}Al_{10}$	85	1.58
78	$Zr_{57}Cu_{20}Al_{10}Ni_8Ti_5$	82	1.49
79	$Zr_{57}Nb_5Cu_{15.4}Ni_{12.6}Al_{10}$	87	1.8
80	$Zr_{60}Fe_5Al_{10}Cu_{25}$	92	1.64
81	$Zr_{60}Ni_{25}Al_{15}$	81	1.79
82	$Zr_{61.88}Cu_{18}Ni_{10.12}Al_{10}$	80	1.73
83	$Zr_{61}Ti_2Cu_{25}Al_{12}$	83	1.63
84	$Zr_{62}Cu_{15.4}Ni_{12.6}Al_{10}$	80	1.81
85	$Zr_{65}Al_{10}Ni_{10}Cu_{15}$	83	1.45

Таблица 1. Окончание

№	Химическая формула	Модуль Юнга E , ГПа	Предел текучести σ_y , ГПа
Сплавы на основе редкоземельных элементов			
86	$\text{Ce}_{70}\text{Al}_{10}\text{Ni}_{10}\text{Cu}_{10}$	30	0.49
87	$\text{Dy}_{55}\text{Al}_{25}\text{Co}_{20}$	61	0.72
88	$\text{Er}_{55}\text{Al}_{25}\text{Co}_{20}$	71	1.12
89	$\text{Ho}_{55}\text{Al}_{25}\text{Co}_{20}$	67	0.87
90	$\text{La}_{55}\text{Al}_{25}\text{Co}_{20}$	41	0.99
91	$\text{La}_{55}\text{Al}_{25}\text{Cu}_{10}\text{Ni}_5\text{Co}_5$	42	0.5
92	$\text{Nd}_{60}\text{Al}_{10}\text{Fe}_{20}\text{Co}_{10}$	51	0.45
93	$\text{Pr}_{55}\text{Al}_{25}\text{Co}_{20}$	46	1.01
94	$\text{Tb}_{55}\text{Al}_{25}\text{Co}_{20}$	60	0.83
95	$\text{Yb}_{62.5}\text{Zn}_{15}\text{Mg}_{17.5}\text{Cu}_5$	27	0.45

уплотнение системы является критическим, что приводит к разрушению системы (см. рис. 1б). Таким образом, аморфный сплав $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ обладает более высокой сопротивляемостью к растяжению, чем к сжатию.

Рисунок 2 показывает соответствие между модулем Юнга E и пределом текучести σ_y для металлических стекол различного состава. Здесь экспериментальные данные, взятые из [10, 25], сравниваются с результатами моделирования настоящей работы. Из рис. 2 видно существование линейной зависимости между E и σ_y с наклоном $E/\sigma_y \approx 50$. Наличие такой универсальной зависимости для различных металлических стекол свя-

зано с тем, что характер межатомных сил притяжения и отталкивания един для металлических систем. Наличие такой линейной зависимости с наклоном ≈ 50 также было установлено ранее на основе анализа экспериментальных данных для более 300 металлических стекол [10]. Значения E и σ_y , найденные из моделирования молекулярной динамики сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$, также укладываются в эту линейную зависимость и находятся в хорошем согласии с экспериментальными данными, полученными для металлических стекол на основе Ni (см. рис. 2). Результат моделирования для сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ предсказывает прочностные свойства, сопоставимые с прочностью металлических стекол на основе Fe.

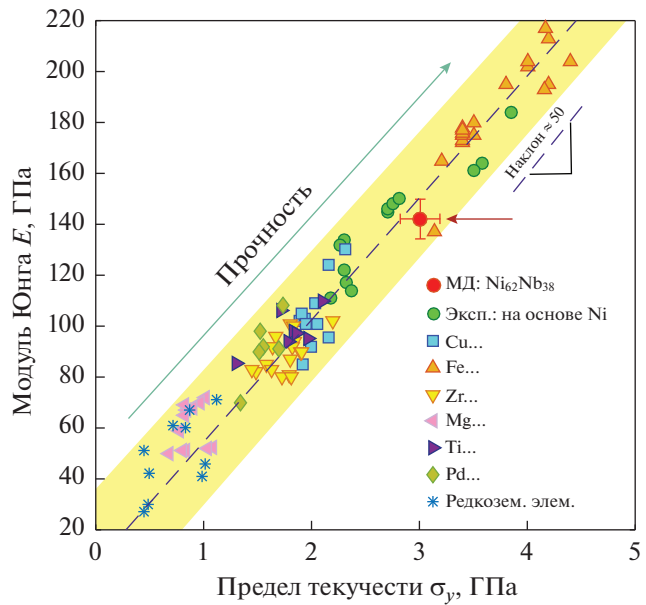


Рис. 2. Соответствие между модулем Юнга и пределом текучести для различных металлических стекол. Данные взяты из табл. 1.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом моделирования молекулярной динамики выполнен расчет основных механических характеристик аморфного сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ при растяжении и сжатии. Построены диаграммы растяжения и сжатия. Впервые показано соответствие между значениями модуля Юнга и предела текучести, которое укладывается в экспериментально установленный линейный закон, единый для металлических стекол с различным составом. Показано, что площадка текучести слабо проявляется в полученных диаграммах растяжения и сжатия. Полученные результаты обнаруживают, что механико-прочностные свойства аморфного сплава $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ оказываются более выраженными по сравнению с металлическими стеклами другого состава и являются сопоставимыми с механическими свойствами металлических стекол на основе железа. Результаты настоящего исследования могут быть использованы для выявления универсальных закономерностей для механических характеристик аморфных металлических стекол при деформации растяжения и сжатия.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 19-12-00022). АВМ выражает признательность Фонду развития теоретической физики и математики “Базис” (№ 20-1-2-38-1).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Schroers J.* // Adv. Mater. 2010. V. 22. P. 1566.
2. *Kruzic J.J.* // Adv. Engin. Mater. 2016. V. 18. P. 1308.
3. *Xiong J., Shi S.-Q., Zhang T.-Y.* // Mater. Design. 2020. V. 187. Art. No. 108378.
4. *Ward L., O’Keeffe S.C., Stevick J. et al.* // Acta Mater. 2018. V. 159. P. 102.
5. *Schuler J.D., Rupert T.J.* // Acta Mater. 2017. V. 140. P. 196.
6. *Galimzyanov B.N., Mokshin A.V.* // J. Non-Cryst. Solids. 2021. V. 570. Art. No. 121009.
7. *Jones M.R., DelRio F.W., Pegues J.W. et al.* // J. Mater. Res. 2021. V. 36. P. 3167.
8. *Xia L., Li W.H., Fang S.S. et al.* // J. Appl. Phys. 2006. V. 99. Art. No. 026103.
9. *Lu W., Tseng J.-C., Feng A. et al.* // J. Non-Cryst. Solids. 2021. V. 564. Art. No. 120834.
10. *Qu R.T., Liu Z.Q., Wang R.F. et al.* // J. Alloys Compounds. 2015. V. 637. P. 44.
11. *Zhang Y., Ashcraft R., Mendelev M.I. et al.* // J. Chem. Phys. 2016. V. 145. Art. No. 204505.
12. *Lesz S., Dercz G.* // J. Therm. Analyt. Calorim. 2016. V. 126. P. 19.
13. *Galimzyanov B.N., Doronina M.A., Mokshin A.V.* // J. Non-Cryst. Solids. 2021. V. 572. Art. No. 121102.
14. *Tuckerman M.E., Alejandre J., López-Rendón R. et al.* // J. Phys. A. 2006. V. 39. P. 5629.
15. *Shinoda W., Shiga M., Mikami M.* // Phys. Rev. B. 2004. V. 69. Art. No. 134103.
16. *Bringa E.M., Caro A., Wang Y. et al.* // Science. 2005. V. 309. P. 1838.
17. *Shen L.-M.* // Acta Mech. Sin. 2012. V. 28. P. 1125.
18. *Evans D.J., Morriss G.P.* Statistical mechanics of non-equilibrium liquids. Cambridge University Press, 2008. 328 p.
19. *Galimzyanov B.N., Mokshin A.V.* // Int. J. Solids Struct. 2021. V. 224. Art. No. 111047.
20. *Xia L., Shan S.T., Ding D. et al.* // Intermetallics. 2007. V. 15. P. 1046.
21. *Teker E., Danish M., Gupta M.K. et al.* // Trans. Indian Inst. Met. 2022. V. 75. P. 717.
22. *Fan H., Wang Q., El-Awady J.A. et al.* // Nature Commun. 2021. V. 12. P. 1845.
23. *Courtney T.H.* Mechanical behavior of materials. Wiley, 2005. 752 p.
24. *Бобылев А.В.* Механические и технологические свойства металлов. Справочник. М.: Металлургия, 1980.
25. *Wang W.H.* // J. Appl. Phys. 2006. V. 99. Art. No. 093506.
26. *Wang Y., Wang Q., Zhao J. et al.* // Scripta Mater. 2010. V. 63. P. 178.

Mechanical response of amorphous $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ metallic alloy under uniaxial deformation

B. N. Galimzyanov^{a,*}, M. A. Doronina^a, A. V. Mokshin^a

^a Kazan Federal University, Kazan, 420008 Russia

*e-mail: bulatgnmail@gmail.com

The mechanical properties of amorphous $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ alloy associated with uniaxial compression and uniaxial tensile are studied at the temperature 300 K based on the large-scale molecular dynamic’s simulations. Stress-strain curves, Young’s modulus, yield strength, and tensile strength are determined for this system. For the first time, some correspondence was found between the values of Young’s modulus and the yield strength, which fits into the experimentally established linear law, which is the same for metallic glasses with different compositions. It is shown that the mechanical and strength properties of amorphous $\text{Ni}_{62}\text{Nb}_{38}$ alloy are more pronounced than those of metallic glasses with a different composition.

УДК 537.226

ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕТЕРОСТРУКТУР НА ОСНОВЕ ОКСИДА ГАФНИЯ

© 2023 г. Я. И. Шарифуллина^{1, *}, И. И. Гумарова^{1, 2}, Р. Ф. Мамин^{1, 2}, О. В. Недопекин¹

¹Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
“Казанский (Приволжский) федеральный университет”, Казань, Россия

²Казанский физико-технический институт имени Е.К. Завойского – обособленное структурное подразделение
Федерального государственного бюджетного учреждения науки “Федеральный исследовательский центр
“Казанский научный центр Российской академии наук”, Казань, Россия

*E-mail: janesharifullina@yandex.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Представлены результаты *ab initio* расчетов объемных структур и тонких пленок оксида гафния, а также гетероструктур на основе оксида гафния в тетрагональной фазе и кремния. Изучены их структурные и электронные свойства. Рассмотрены спектры плотности состояний, проведен анализ полученных результатов, а также выполнено сравнение некоторых из них с ранее полученными данными (для изученных систем).

DOI: 10.31857/S0367676522701034, EDN: MDCZEP

В последние годы HfO_2 активно изучается, главным образом, из-за его потенциального применения в качестве диэлектрика с высоким значением приведенной диэлектрической проницаемости в полевых транзисторах металл-оксид-полупроводник (МОП). В 2007 г. корпорация Intel внедрила оксид гафния HfO_2 в качестве диэлектрика затвора в кремниевых устройствах семейства Intel Core™ вместо оксида кремния SiO_2 [1]. Это событие получило широкое признание как краеугольный камень в микроэлектронике. Кроме того, оксид гафния (чистый, легированный или с дефицитом кислорода) в определенной кристаллической конфигурации обладает сегнетоэлектрическими свойствами и используется в современных устройствах сегнетоэлектрической оперативной памяти (FeRAM) [2–5] в самой коммерчески успешной и распространенной на сегодняшний день концепции сегнетоэлектрической памяти, а также привлекает дополнительный интерес в качестве перспективного и наиболее оптимального по всем параметрам сегнетоэлектрика для других архитектур сегнетоэлектрической памяти, таких как сегнетоэлектрический полевой транзистор (FeFET) [6–10] и сегнетоэлектрический туннельный переход (FTJ) [11–14].

Сегнетоэлектричество тесно связано с кристаллической структурой: а именно, только нецентросимметричные пространственные группы могут проявлять пьезоэлектрические и сегнетоэлектрические свойства [15]. Все ранее распро-

страненные и зарегистрированные объемные фазы HfO_2 (пространственные группы $P4_2/nmc$, $Fm3m$, $P2_1/c$, $Pbca$, $Pbcm$) являются центросимметричными и, следовательно, не могут быть сегнетоэлектриками.

Впервые, сегнетоэлектричество было обнаружено в легированных кремнием Si тонких пленках HfO_2 толщиной 10 нм и с менее чем 4% примеси Si [16]. Наблюдаемое сегнетоэлектричество было предписано образованию полярной орторомбической фазы, $Pca2_1$. Эта *o*-фаза была впервые идентифицирована в керамике ZrO_2 , легированной магнием Mg [17], который структурно и химически аналогичен HfO_2 .

HfO_2 может принимать различные кристаллические структуры в твердом состоянии и обладать различными физическими свойствами, зависящими от симметрии кристалла. Связь между атомным смещением и свойствами фазы играет чрезвычайно важную роль для лучшего понимания применения HfO_2 в производстве усовершенствованных электронных устройств.

В настоящей работе проводится исследование четырех полиморфных модификаций HfO_2 : тетрагональной $P4_2/nmc$ (*t*-фаза), кубической $Fm3m$ (*c*-фаза), моноклинной $P2_1/c$ (*m*-фаза) и орторомбической $Pca2_1$ (*o*-фаза). Элементарные ячейки рассмотренных в данной работе соединений представлены на рис. 1а. Для этих фаз были произведены расчеты по определению: параметров

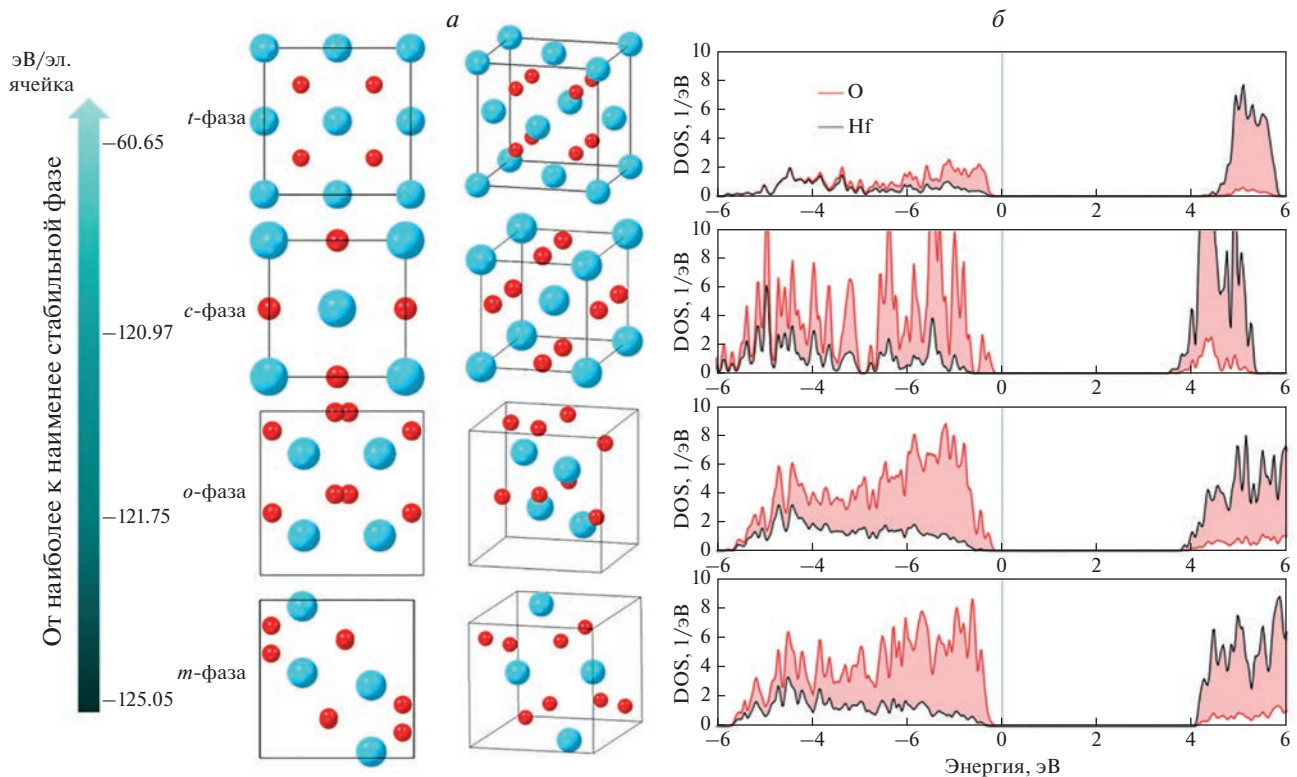


Рис. 1. Элементарные ячейки каждой из четырех исследуемых фаз объемной структуры оксида гафния, синим цветом выделены атомы гафния, красным — атомы кислорода (а). Спектры плотностей состояний для каждой из четырех фаз оксида гафния, объемная структуры (б).

решеток, энергий образования и спектров плотности состояний (DOS, density of states). Моделирование проводилось с использованием метода теории функционала плотности (DFT) и приближения обобщенного градиента для описания обменно-корреляционной энергии [18].

Для того чтобы определить параметры моделирования, сначала были проделаны расчеты для объемных структур, для которых уже имеются данные в теоретических и экспериментальных статьях [19–21]. Моделирование и исследование всех четырех полиморфных модификаций оксида гафния были сделаны с помощью платформы для моделирования Vienna Ab-Initio Simulation Package (VASP) [22–24], являющейся частью программного пакета MedeA® Materials Design [25]. Расчеты были произведены с поправкой $+U$, выбранной равной 2 эВ, для состояния $\text{Hf } 5d$, которая позволяет улучшить описание электронных свойств HfO_2 в объемных и сложных конфигурациях. Для расчетов объемных структур ограничение по энергии было выбрано $E_{\text{cutoff}} = 400$ эВ, остаточные силы — 0.05 эВ/Å, параметр сходимости — $1 \cdot 10^{-5}$ эВ, а зона Бриллюэна была разделена с помощью сетки $3 \times 3 \times 3$.

Чтобы убедиться в надежности принятого вычислительного метода $\text{DFT} + U$, было проведено прямое сравнение с экспериментальными данными, а также с ранее выполненными расчетами. По данным в таблице 1 можно сделать вывод о том, что метод $\text{DFT} + U$ с $U = 2$ эВ несущественно влияет на рассчитанные значения постоянных решеток. При больших значениях U и учете p -электронов кислорода размеры увеличиваются на 0.2 Å, что приводит к результатам, отклоняющимся от экспериментальной тенденции [26].

Полученные результаты показали, что выбранные нами параметры являются оптимальными для системы HfO_2 для получения параметров решетки в хорошем согласии с экспериментальными значениями, однако помимо параметров решетки следовало также проверить, соответствует ли ширина запрещенной зоны ранее полученным результатам.

Энергетическая запрещенная зона вычисляется по зависимости плотности состояний от общей энергии, как разница между нижней частью зоны проводимости и верхней частью валентной зоны. Полученные спектры плотности состояний для каждой из четырех структур HfO_2 представлены на рис. 1б. Данные о ширине запрещенной зоны и энергии связи приведены в табл. 2.

Таблица 1. Параметры решетки четырех различных объемных структур оксида гафния

Фаза	Параметры решетки, Å (PBE-GGA+U)	Параметры решетки, Å (PBE-GGA) [26]	Параметры решетки, Å (PBE-GGA, $U_{Hf} = 6$ эВ, $U_O = 4$ эВ) [26]	Параметры решетки, Å (эксперимент) [19–21]
Моноклинная,	$a = 5.13$ $b = 5.20$ $c = 5.29$	$a = 5.07$ $b = 5.13$ $c = 5.29$	$a = 5.28$ $b = 5.28$ $c = 5.43$	$a = 5.07$ $b = 5.14$ $c = 5.29$
Кубическая	$a = b = c = 5.07$	$a = b = c = 5.06$	$a = b = c = 5.28$	$a = b = c = 5.08$
Тетрагональная	$a = b = 5.07$ $c = 5.14$	$a = b = 5.06$ $c = 5.22$	$a = 5.21,$ $b = 5.32$ $c = 5.42$	$a = b = 5.06$ $c = 5.2$
Орторомбическая	$a = 5.26$ $b = 5.05$ $c = 5.07$	$a = 5.23$ $b = 5.01$ $c = 5.05$	$a = 5.41$ $b = 5.22$ $c = 5.25$	$a = 5.23$ $b = 5.00$ $c = 5.05$

Таблица 2. Ширина запрещенной зоны каждой из четырех различных объемных структур оксида гафния

Фаза	Ширина запрещенной зоны, эВ ($U = 2$ эВ)	Ширина запрещенной зоны, эВ ($U_{Hf} = 6$ эВ, $U_O = 2$ эВ) [26]	Ширина запрещенной зоны, эВ (без учета U) [26]	Энергия VASP, эВ
Моноклинная	4.14	5.24	3.79	–122.05
Кубическая	3.80	4.76	3.42	–120.97
Тетрагональная	4.46	6.06	4.03	–60.65
Орторомбическая	4.35	5.67	4.01	–121.71

Наибольшей шириной запрещенной зоны обладает тетрагональная фаза с пространственной группой $P4_2/nmc$, в то время как запрещенная зона кубической фазы — самая узкая, и общая тенденция хорошо согласуется с опубликованными данными [26].

Ширина запрещенной зоны для оксида гафния по экспериментальным данным составляет от 5.6 до 5.8 эВ. Исходя из расчетов плотности состояний, следует, что примененная поправка $U = 2$ эВ в недостаточной мере подходит для измерений ширины запрещенной зоны. Однако качественно вид графиков плотности состояний совпадает с результатами, полученными ранее (с большим значением $U(Hf) = 6$ эВ для гафния, а также с учетом $U(O) = 4$ эВ для кислорода), из чего было принято решение использовать тот же параметр $U = 2$ эВ при дальнейших расчетах. К тому же расчеты с учетом U показывают лучшие результаты в сравнении с расчетами без корректирующего параметра.

Из вычислительных данных m -HfO₂ оказывается наиболее стабильной фазой (–122.05 эВ на элементарную ячейку) (рис. 2) (что наблюдается экспериментально), а фазы o - и c -HfO₂ были об-

наружены как низкоэнергетические системы со значениями энергии –121.71 и –120.97 эВ на элементарную ячейку соответственно. Фаза t -HfO₂ показала низкую энергию связи со значениями –60.65 эВ/элементарная ячейка.

Далее рассматриваются тонкие пленки оксида гафния в четырех разных фазах, тех же, что были выбраны при расчетах для объемного материала — моноклинной (рис. 2а), кубической (рис. 2б), тетрагональной (рис. 2в) и орторомбической (рис. 2г).

Тонкие пленки были получены с помощью добавления к объемной структуре вакуума с двух концов ячейки вдоль толщины пленки. Были рассмотрены структуры с 2, 3 и 4 слоями. Параметры структурной оптимизации и расчетов плотности состояний приведены в табл. 3. Используется та же поправка DFT + U : $U = 2$ эВ.

Параметры ячеек тонкопленочных структур представлены ниже, в табл. 4. Параметры a и b остались теми же, что и у объемных структур, параметр c теперь описывает толщину получившихся пленок.

Были проведены расчеты плотности состояний для каждой из кристаллических фаз. Численные данные зафиксированы в табл. 5.

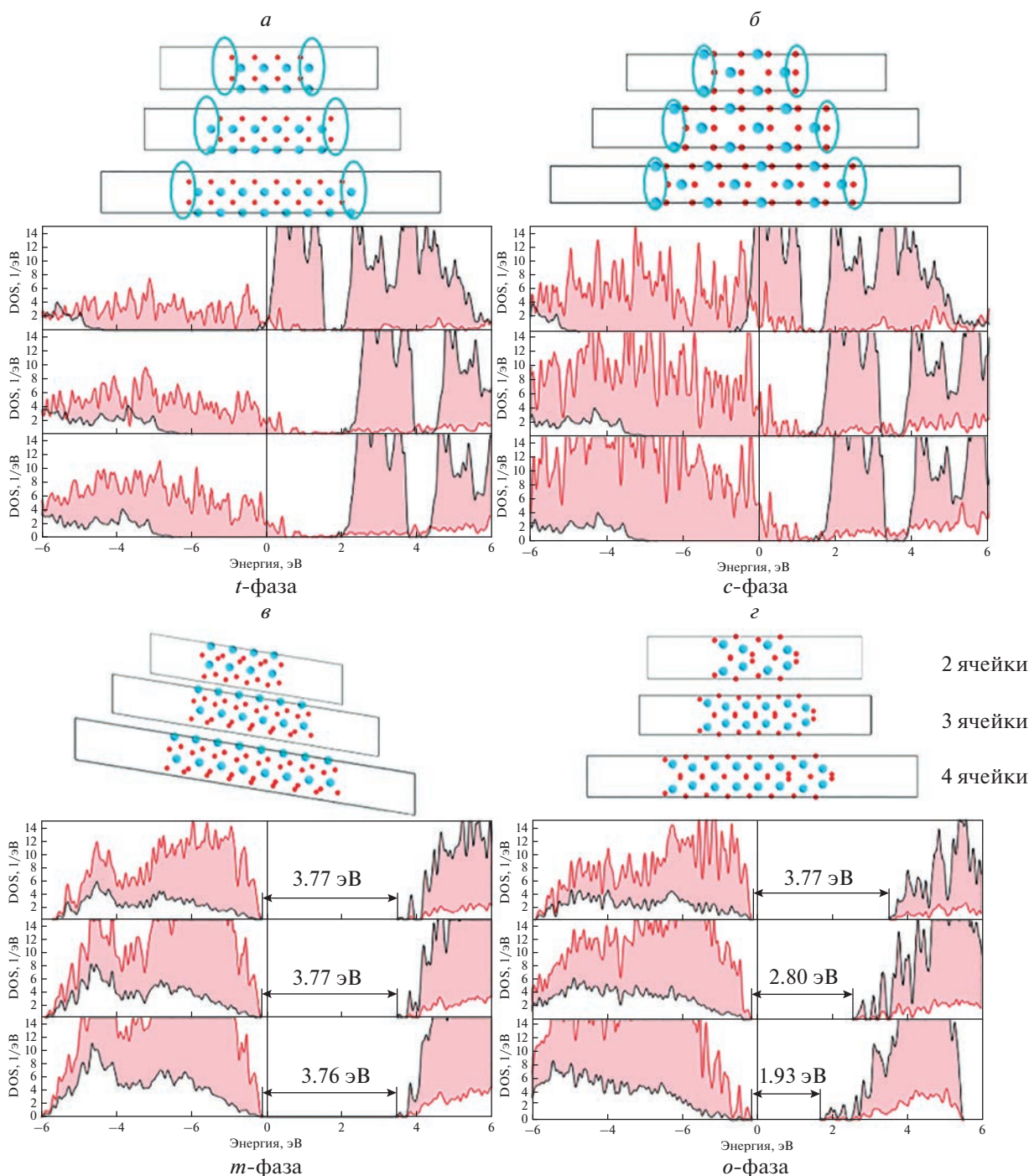


Рис. 2. Тонкие пленки тетрагональной фазы, структура и спектр плотности состояний. Голубым овалом выделены атомы, электроны которых ответственны за возникновение проводимости в пленке (а). Тонкие пленки кубической фазы (б). Тонкие пленки моноклинной фазы (в). Тонкие пленки орторомбической фазы (г).

Было обнаружено, что с увеличением толщины слоев энергия связи также увеличивается, так как чем больше (или объемнее) структура, тем сложнее разорвать связи между атомами и слоями. Перечисление от наиболее к наименее стабильной фазе – *m*-фаза, *o*-фаза, *c*-фаза и *t*-фаза;

данный порядок сохраняется при любом совпадающем количестве слоев. Такой же порядок наблюдался и у объемных структур.

Полученные графики плотности состояний для всех четырех фаз изображены на рис. 2. В случае орторомбической фазы запрещенная зона

Таблица 3. Параметры моделирования для тонких пленок оксида гафния

Базис	E_{cutoff} , эВ	k -Сетка	Метод интегрирования	Размытие, эВ/Å
Плоские волны	520	$5 \times 5 \times 1$	По Гауссу	0.05

Таблица 4. Структурные свойства тонких пленок оксида гафния

Фаза	Параметры a и b , Å	Кол-во слоев	Параметр c , (толщина пленки в Å)	Кол-во атомов в ячейке
Моноклинная	$a = 5.13$	2	25	24
	$b = 5.20$	3	35	36
		4	42	48
Кубическая	$a = 5.07$	2	25	24
	$b = 5.07$	3	30	36
		4	40	48
Тетрагональная	$a = 5.07$	2	25	12
	$b = 5.07$	3	30	18
		4	40	24
Орторомбическая	$a = 5.05$	2	25	24
	$b = 5.25$	3	30	36
		4	40	48

сужается с увеличением количества слоев. Запрещенная зона моноклинной фазы меняется незначительно.

Тетрагональная и кубическая модификации оказались проводящими. Для того, чтобы определить источник возникшей проводимости, была рассмотрена область на графике плотности состояний вблизи уровня Ферми (что соответствует 0 эВ на графике).

За проводимость в тетрагональной фазе отвечают атомы гафния и атомы кислорода, граничащие с вакуумом: появились оборванные кислородные связи, а следовательно — свободные электроны. Это произошло в результате моделирования структур. В случае напыления такой пленки эти связи могут закрыться за счет присутствия примесных атомов или дефектов.

Аналогичная ситуация с кубической фазой. Основная причина отсутствия запрещенной зоны

Таблица 5. Электронные свойства тонких пленок оксида гафния

Фаза	Число слоев	Ширина запрещенной зоны, эВ	Энергия VASP, эВ
Моноклинная	2	3.77	−229.51
	3	3.77	−346.69
	4	3.76	−463.92
Кубическая	2	—	−215.72
	3	—	−331.01
	4	—	−446.89
Тетрагональная	2	—	−107.82
	3	—	−165.50
	4	—	−223.47
Орторомбическая	2	3.78	−225.26
	3	2.80	−342.13
	4	1.93	−459.02

Таблица 6. Параметры моделирования гетероструктур на основе оксида гафния и кремния

Базис	E_{cutoff} , эВ	k -Сетка	Метод интегрирования	Размытие, эВ/Å
Плоские волны	400	$5 \times 5 \times 1$	По Гауссу	0.05

в тонких пленках — граничащие с вакуумом атомы гафния и кислорода. Источник тот же, что и для тетрагональной фазы.

Наконец, была построена и исследована модель гетероструктуры, состоящей из тонкой пленки оксида гафния с симметрией $P4_2/nmc$ и кремния в качестве подложки. С двух противоположных концов ячейки был добавлен вакуум.

Параметры моделирования записаны в табл. 6. Поправка к расчетам DFT + U : $U = 2$ эВ. Изображение получившейся структуры представлено на рис. 3.

Размер ячейки составил $3.86 \times 3.86 \times 80$ Å (с учетом вакуума вдоль оси z (толщины пленки)). Ячейка состоит из 11 атомов гафния, 22 атомов кислорода и 16 атомов кремния, из 5 слоев HfO_2 и 4 слоев Si.

Было получено, что структура является проводником. Основной вклад в проводимость вносят валентные p -электроны кислорода на границе с кремнием. Для сравнения была смоделирована структура без вакуума — периодическая, каждый раз повторяющаяся в бесконечности (рис. 4). Она, по аналогии с предыдущей структурой, является полупроводником.

Таким образом, были исследованы структурные и электронные свойства объемных структур оксида гафния, тонких пленок, а также гетероструктур на его основе. Методы DFT и DFT + U были использованы для проведения сравнения между четырьмя кристаллическими фазами окси-

да гафния, подчеркивая все возможные различия на основе свойств фаз. Был сделан компромисс в пользу хорошо согласующихся с экспериментом параметров решетки, вследствие чего выбрано оптимальное значение корректирующей поправки $U = 2$ эВ для d -электронов гафния.

Было обнаружено, что тонкие пленки тетрагональной и кубической фазы являются проводниками, и основной вклад в их проводимость вносят электроны граничащих с вакуумом атомов кислорода. Моноклинная фаза оказалась диэлектриком, орторомбическая же — диэлектриком или полупроводником (в зависимости от толщины слоя/количества слоев). Тонкая пленка, состоящая из четырех слоев орторомбической фазы, обладает направленным суммарным дипольным моментом и является однодоменной структурой.

Оптимизированные гетероструктуры HfO_2/Si с тетрагональной фазой оксида гафния также обладают проводимостью, источником которой являются граничащие с кремнием атомы кислорода.

Полученные результаты показали прямую зависимость между химико-физическими свойствами HfO_2 и смещениями атомов. Метод теории функционала плотности (DFT) позволяет детально изучить свойства различных кристаллических модификаций оксида гафния, и результаты, полученные этим методом, могут быть использованы при создании электронных устройств. Было проведено сравнение результатов, полученных с использованием значений поправки U и без них (данные

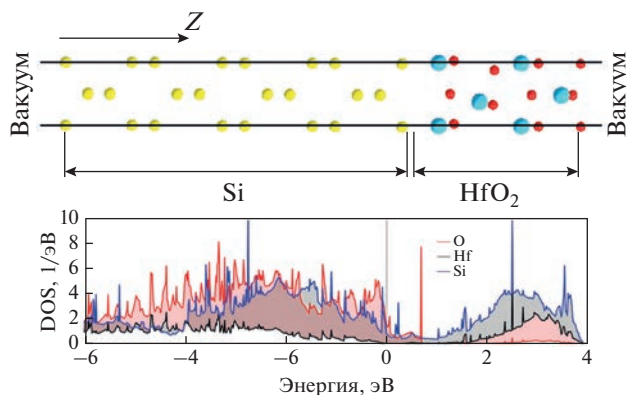


Рис. 3. Гетероструктура $\text{HfO}_2(P4_2/nmc)/\text{Si}$ после оптимизации. Синие шарики — атомы Hf, красные — O, желтые — Si; справа и слева — вакуум. Снизу — спектр плотности состояний данной гетероструктуры.

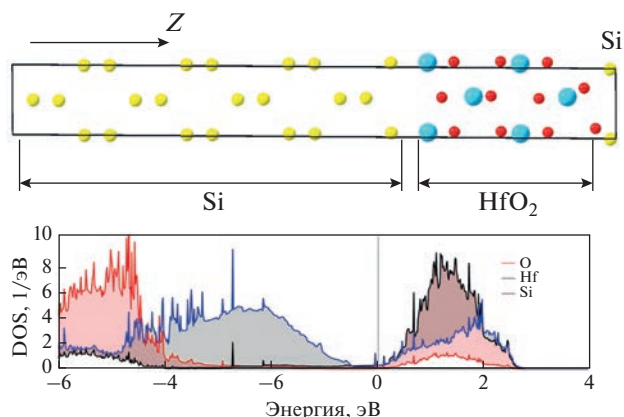


Рис. 4. Гетероструктура $\text{HfO}_2(P4_2/nmc)/\text{Si}$ после оптимизации, без вакуума. Снизу — спектр плотности состояний данной гетероструктуры.

получены из литературы), что подчеркивает возможности и ограничения обоих методов.

Работа выполнена за счет средств Программы стратегического академического лидерства Казанского (Приволжского) федерального университета.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Gritsenko V.A., Perevalov T.V., Islamov D.R. // Phys. Reports. 2016. V. 613. P. 1.
2. Song Ch., Kwon H. // Electronics. 2021. V. 10. Art. No. 2759.
3. Воротилов К.А., Сугов А.С. // Нано- и микросист. техника. 2008. Т. 10. С. 30.
4. Ishiwara H. // J. Nanosci. Nanotech. 2012. V. 12. Art. No. 7619-27.
5. Mikolajick T., Slesazek S., Mulaosmanovic H. et al. // J. Appl. Phys. 2021. V. 129. Art. No. 100901.
6. Tsybal E., Dagotto E., Eom C., Ramesh R. // In: Multifunctional oxide heterostructures. Oxford: Oxford University Press, 2012. P. 340.
7. Sugibuchi K., Kurogi Y., Endo N. // J. Appl. Phys. 1975. V. 46. P. 2877.
8. Muller J., Polakowski P., Muller S. et al. // Proc. NVMTS (Pittsburgh, 2016). P. 1.
9. Mo F., Tagawa Y., Jin C. et al. // IEEE J. Solid-State Circuits. 2019. V. 11. P. 1.
10. Zacharaki C., Tsipis P., Chaitoglou S. et al. // Appl. Phys. Lett. 2019. V. 114. Art. No. 112901.
11. Lee Y., Son S., Ham W., Ahn S. // Materials. 2022. V. 15. Art. No. 2251.
12. Chanthbouala A., Crassous A., Garcia V. et al. // Nature Nanotech. 2012. V. 7. P. 101.
13. Garcia V., Fusil S., Bouzehouane K. et al. // Nature. 2009. V. 460. P. 81.
14. Wang P., Yu S. // MRS Commun. 2020. V. 10. P. 538.
15. Böske T., Müller J., Bräuhäus D. et al. // Appl. Phys. Lett. 2011. V. 99. Art. No. 102903.
16. Kisi E.H., Howard C.J. // Key Engin. Mater. 1998. V. 153. P. 1.
17. Huan T.D., Sharma V., Rossetti G.A., Ramprasad R. // Phys. Rev. B. 2014. V. 90. Art. No. 064111.
18. Perdew J.P., Burke K., Ernzerhof M. // Phys. Rev. Lett. 1996. V. 77. № 18. Art. No. 3865.
19. Robertson J., Wallace R.M. // Mater. Sci. Engin. R. 2015. V. 88. P. 1.
20. Afanas'ev V.V., Stesmans A., Chen F. et al. // Appl. Phys. Lett. 2002. V. 81. Art. No. 1053.
21. Adelman C., Sriramkumar V., Van Elshocht S. et al. // J. Appl. Phys. 2007. V. 91. Art. No. 162902.
22. Kresse G., Furthmüller J. // Comp. Mater. Sci. 1996. V. 6. No. 1. P. 15.
23. Kresse G., Furthmüller J. // Phys. Rev. B. 1996. V. 54. No. 16. Art. No. 11169.
24. Kresse G., Joubert D. // Phys. Rev. B. 1999. V. 59. No. 3. Art. No. 1758.
25. Medea version 3.4. San Diego: Materials Design Inc., 2012.
26. Laudadio E., Stipa P., Pierantoni L. et al. // Crystals. 2022. V. 12. P. 2.

Investigation of heterostructures based on hafnium oxide

Y. I. Sharifullina^{a, *}, I. I. Gumarova^{a, b}, R. F. Mamin^b, O. V. Nedopekin^a

^a Kazan Federal University, Kazan, 420008 Russia

^b Zavoisky Physical-Technical Institute, FRC Kazan Scientific Center of the Russian Academy of Science, Kazan, 420029 Russia

*e-mail: janesharifullina@yandex.ru

We presented ab initio calculations of bulk structures and thin films of hafnium oxide, and heterostructures based on hafnium oxide in the tetragonal phase and silicon, structural and electronic properties are investigated. The density of states spectra is considered, the results obtained are analyzed, and some of them are compared with previously obtained data (for the studied systems).

Волновые явления: физика и применения

Редактор тематического выпуска
канд. физ.-мат. наук **А. Н. Калиш**

УДК 621.315.592:621.373

КОГЕРЕНТНОСТЬ ИЗЛУЧЕНИЯ МОЩНЫХ ЛАЗЕРНЫХ ДИОДОВ И ИХ СПЕКТРАЛЬНО-ПРОСТРАНСТВЕННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ

© 2023 г. А. Г. Ржанов*

*Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова”, физический факультет, Москва, Россия*

**E-mail: rjanov@mail.ru*

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Рассмотрены возможные физические механизмы, влияющие на длину когерентности излучения мощных лазерных диодов при их медленной деградации. Проанализирована связь между ослаблением степени когерентности излучения при деградации лазера и пространственно-спектральным разделением излучения мощных лазеров на отдельные каналы генерации.

DOI: 10.31857/S0367676522701046, EDN: MDNSIC

ВВЕДЕНИЕ

В последние годы проводятся исследования по изучению формирования излучения мощных лазерных диодов (МЛД) с широким контактом и квантовой ямой (КЯ) [1] при их постепенной деградации с течением времени [2–6]. В результате этих исследований было установлено, что определить степень наработки ресурса МЛД и необходимость его замены в рабочих установках можно по спектру и поляризации его излучения на конкретном этапе работы устройства [2, 7]. Это необходимо для экспресс-диагностики лазерных диодов, работающих на ответственных участках производства или других областей деятельности. Спектр излучения МЛД тесно связан с пространственной структурой излучения на зеркале прибора (в ближнем поле) и когерентными свойствами этого излучения. Эти параметры изменяются со временем в процессе деградации МЛД.

В данной работе мы обсуждаем связь между когерентностью излучения МЛД, его спектральными характеристиками и пространственным распределением поля на зеркале прибора с привлечением экспериментальных и аналитических оценок. Кроме того, целью исследования является установление соответствия между когерентностью и механизмами спектральной селекции в МЛД, в частности, с потерями излучения в лазерном резонаторе.

КОГЕРЕНТНОСТЬ ИЗЛУЧЕНИЯ И ПЛОТНОСТЬ СОСТОЯНИЙ

Следует отметить, что прямого соответствия между огибающей спектра излучения, которую обычно измеряют в работах по спектрометрии лазеров, и длиной когерентности излучения МЛД не обнаружено. Это говорит о том, что конвенциональная теория когерентности, описывающая связь между временем (продольной длиной) когерентности излучения, в случае лазерных диодов должна применяться с определенными оговорками. Наиболее распространенные сейчас МЛД с КЯ и расширенным волноводом имеют полную ширину частотного спектра излучения около $\Delta\lambda_{\text{кя}} = 6$ нм [8], соответствующую ширине электронного уровня (подзоны) примерно $\Delta E_{\text{кя}} = 8.3 \cdot 10^{-3}$ эВ для КЯ толщиной $d_{\text{кя}} = 12$ нм и глубиной $\Delta E_c = 0.129$ эВ в зоне проводимости. Одна из возможных энергетических структур КЯ показана на рис. 1 [1]. Если считать, что вынужденное излучение происходит с уровня, имеющего энергетическую ширину $\Delta E_{\text{кя}} = 8.3 \cdot 10^{-3}$ эВ, то согласно теории, длина когерентности должна быть равна $L_{\text{ког}} = 155$ мкм. Эта оценка отличается от экспериментальных данных более чем на 2 порядка: эксперимент показывает величину длины когерентности лазерных диодов в диапазоне около 1–5 см [9, 10]. Таким образом, когерентность излучения МЛД надо рассматривать как среднюю величину для разных компонентов, составляющих частот-

ный спектр лазера, которые должны иметь естественную ширину линии $\Delta\lambda_{\text{ког}}$ [10]:

$$\Delta\lambda_{\text{ког}} = \frac{\lambda_0^2}{L_{\text{ког}}}, \quad (1)$$

где λ_0 есть средняя длина волны излучения МЛД в вакууме. Мы используем в расчетах величину $\lambda_0 = 964$ нм [1, 8]. Длину когерентности МЛД можно оценить, согласно [11–13], через число характерных линий в спектре излучения МЛД, которые соответствуют пространственным каналам генерации $N_{\text{кан}}$:

$$N_{\text{кан}} \approx W \sqrt{\frac{2\pi n}{\lambda_0 L_{\text{ког}}}}, \quad (2)$$

где n – эффективный показатель преломления фундаментальной моды излучения канала генерации ($n = 3.6$).

В рассматриваемом нами МЛД с шириной активной области $W = 100$ мкм [1] число линий в процессе деградации изменялось от 3 до 5 [2]. Например, если в процессе работы лазера взять момент измерения, когда число каналов (линий вгибающей спектра) равно $N_{\text{кан}} = 3$, то выражения (1), (2) дают значение $\Delta\lambda_{\text{ког}} = 3.5 \cdot 10^{-2}$ нм ($\Delta E_{\text{ког}} = 4.6 \cdot 10^{-5}$ эВ, $L_{\text{ког}} = 2.7$ см). Таким образом, можно формально рассматривать спектр МЛД в виде набора из $N_{\text{ист}} = \Delta\lambda_{\text{кя}}/\Delta\lambda_{\text{ког}}$ источников со средней длиной когерентности излучения каждого $L_{\text{ког}} = 2.7$ см. Эта величина в конкретном МЛД должна быть связана с квантовыми характеристиками рабочей подзоны КЯ (рис. 1) и добротностью “холодного” (в отсутствие накачки) резонатора МЛД. Количество когерентных излучателей, приходящихся на единичный спектральный интервал, можно для сравнения связать с понятием плотности электронных состояний в рабочих подзонах КЯ. Следует отметить, что ширина спектральной линии резонатора Фабри–Перо (коэффициенты отражения зеркал 98 и 2%) оказывается близкой к приведенной выше полосе когерентности, о чем речь пойдет ниже.

Рассмотрим плотность состояний подробнее. Для простоты ограничимся рассмотрением зоны проводимости. Обычно вводится понятие “эффективная плотность состояний”, которое применимо в тех случаях, когда считается, что энергия уровня Ферми стремится быть равной энергии дна зоны проводимости. В нашем случае, как видно из рис. 1, это условие можно применять для дна электронной подзоны, считая, что $E - E_c = 0.04$ эВ.

В объемных полупроводниках плотность состояний рассчитывается по известной модели параболической зоны в зависимости от превыше-

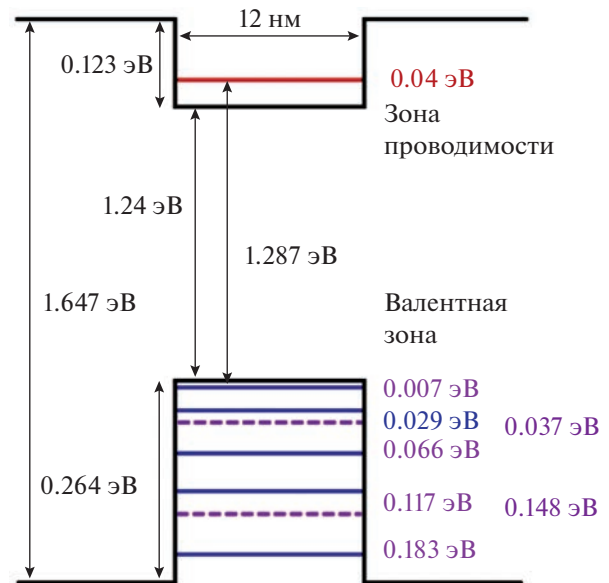


Рис. 1. Энергетическая диаграмма уровней (подзон) в квантовой яме 12 нм мощного лазерного диода. Состав слоев: $\text{In}_{0.26}\text{Ga}_{0.74}\text{As}_{0.47}\text{P}_{0.53}/\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$. В валентной зоне сплошные линии – тяжелые дырки, пунктир – легкие дырки.

ния электронами энергии дна зоны проводимости E_c :

$$\rho(E) = \frac{V(2m_n^*)^{3/2}}{2\pi^2\hbar^3} (E - E_c)^{1/2}, \quad (3)$$

где V – объем полупроводника, m_n^* – эффективная масса электрона в данном материале.

Так как в КЯ плотность состояний одинакова в пределах подзоны, то ее можно рассчитать по формуле (3), подставив минимальное значение энергии в подзоне $E - E_c = 0.04$ эВ (см. рис. 1). Остальные значения: $m_n^* = 0.061m_0$ для $\text{In}_{0.14}\text{Ga}_{0.86}\text{As}$ [14], $m_0 = 9.1 \cdot 10^{-31}$ кг – масса электрона, $V = 2.4 \cdot 10^3$ мкм³. Объем V слоя КЯ рассчитывается из следующих величин: длина резонатора $L = 2$ мм, ширина активной области $W = 100$ мкм, толщина $d_{\text{кя}} = 12$ нм. В результате получается величина плотности состояний в конкретном МЛД: $\rho = 5.0 \cdot 10^{10}$ эВ⁻¹, что соответствует среднему интервалу между квантовыми составляющими электронного спектра $\Delta E_{\text{кв}} = 2.0 \cdot 10^{-11}$ эВ. Сравнение этой величины с шириной энергетического спектра элементарного когерентного источника $\Delta E_{\text{ког}} = 4.6 \cdot 10^{-5}$ эВ показывает, что ни толщина КЯ $d_{\text{кя}}$, ни ее объем V , не могут существенно влиять на длину когерентности МЛД. Ширина линии отдельных квазикогерентных источников оказывается на 6 порядков больше, чем расстояние между уровнями,

наполняющими энергетический спектр КЯ. Поэтому можно сделать вывод, что когерентность излучения лазерных диодов определяется либо энергетическим спектром отдельных атомов (или их композиций), составляющих полупроводниковый кристалл, либо наличием дефектов в области КЯ и волноводных слоев, то есть с диссипацией.

КОГЕРЕНТНОСТЬ ИЗЛУЧЕНИЯ И ЛАЗЕРНЫЙ РЕЗОНАТОР

Рассмотрим вопрос о влиянии добротности лазерного резонатора Фабри–Перо на когерентность излучения МЛД. Ширина резонанса продольных мод $\Delta\lambda_{\text{рез}}$ и спектрального интервала между модами Фабри–Перо $\Delta\lambda_{\text{ФП}}$ вычисляется по известным формулам:

$$\Delta\lambda_{\text{рез}} = \frac{\lambda_0}{M\pi} \left(L\alpha_{\text{вну}} + \frac{1}{2} \ln \left(\frac{1}{R_1 R_2} \right) \right); \quad (4)$$

$$\Delta\lambda_{\text{ФП}} = \frac{\lambda_0^2}{2nL}, \quad (5)$$

где $R_1 = 0.02$, $R_2 = 0.98$ – коэффициенты отражения зеркал МЛД по мощности, $M = 1.49 \cdot 10^4$ – номер продольной моды, соответствующей длине волны $\lambda_0 = 964$ нм, $\alpha_{\text{вну}} = 10 \text{ см}^{-1}$ – полные внутренние потери в резонаторе МЛД (оценочное значение). Расчет по формулам (4), (5) для конкретного МЛД (рис. 1) дает значения $\Delta\lambda_{\text{рез}} = 6.11 \cdot 10^{-2}$ нм и $\Delta\lambda_{\text{ФП}} = 6.45 \cdot 10^{-2}$ нм. Сравнение $\Delta\lambda_{\text{рез}} = 6.11 \cdot 10^{-2}$ нм с $\Delta\lambda_{\text{ког}} = 3.50 \cdot 10^{-2}$ нм показывает, что с высокой долей достоверности можно говорить о том, что когерентные свойства МЛД определяются в первую очередь потерями излучения внутри резонатора и на зеркалах. В процессе деградации, особенно при поддержании постоянной мощности излучения МЛД, ожидать изменений в коэффициентах отражения зеркал не приходится, так как любое ухудшение их отражательной способности приведет к их мгновенному тепловому разрушению (катастрофической деградации). Поэтому можно сделать вывод, что изменение величины внутренних потерь в резонаторе в процессе работы МЛД является одной из главных причин изменений длины когерентности, а значит как пространственного, так и спектрального распределения излучения.

Разделим выражение (4) для $\Delta\lambda_{\text{рез}}$ на два слагаемых: $\Delta\lambda_{\text{рез вну}} = 3.06 \cdot 10^{-2}$ нм (вклад диссипации) и $\Delta\lambda_{\text{рез R}} = 3.05 \cdot 10^{-2}$ нм (вклад зеркал). Точного значения $\alpha_{\text{вну}}$ мы не знаем, но в рамках данного исследования мы можем уточнить его величину для МЛД с тремя каналами генерации. В силу аддитивности потерь можно записать, что вклад внутренних потерь в ширину линии излучения, определяющую когерентность, составит $\Delta\lambda_{\text{рез вну}} =$

$= (3.50 - 3.05) \cdot 10^{-2} = 4.5 \cdot 10^{-3}$ нм что соответствует значению $\alpha_{\text{вну}} = 1.5 \text{ см}^{-1}$. Таким образом, можно проследить связь между деградацией и когерентностью излучения через внутренние потери, от которых напрямую зависит добротность холодного резонатора Фабри–Перо (4). В свою очередь изменение длины когерентности, как это было показано ранее в [12–14], определяет вид спектра и число каналов генерации в МЛД. Подлежит дальнейшему анализу связь между внутренними оптическими потерями $\alpha_{\text{вну}}$ в лазерных слоях и нелинейной рефракцией, имеющей место в активной полупроводниковой среде. Оба этих физических явления (диссипация и нелинейная рефракция) должны быть связаны между собой через наличие дефектов и неоднородностей в активном и волноводных слоях МЛД.

В то же время всевозможные попытки моделирования МЛД с применением традиционных методов [12–14], основывающихся на использовании когерентных подходов, оказываются малоэффективными, так как не могут описать одновременно весь лазерный резонатор. В пределах широкой области генерации МЛД в силу ограниченной величины длины пространственной когерентности и нелинейных свойств полупроводникового материала обязательно присутствует несколько когерентных, но несвязанных по фазе между собой каналов генерации.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, мы показали, что в процессе деградации МЛД меняются диссипативные свойства кристалла, что опосредованно приводит к существенным изменениям характеристик излучения. В частности, при увеличении числа дефектов в активном и волноводных слоях МЛД происходит рост внутренних потерь, поэтому должна изменяться длина когерентности излучения лазера, а следовательно – число пространственных каналов генерации и линий в спектре излучения лазера.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Тарасов И.С. // Квант. электрон. 2010. Т. 40. № 8. С. 661; Tarasov I.S. // Quant. Electron. 2010. V. 40. No. 8. P. 661.
2. Близнюк В.В., Паршин В.А., Ржанов А.Г., Тарасов А.Е. // Изв. РАН. Сер. физ. 2021. Т. 85. № 2. С. 225; Bli-znyuk V.V., Parshin V.A., Rzhanov A.G., Tarasov A.E. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2021. V. 85. No. 2. P. 184.
3. Близнюк В.В., Коваль О.И., Паршин В.А. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2020. Т. 84. № 2. С. 225; Bli-znyuk V.V., Koval O.I., Parshin V.A. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2020. V. 84. No. 2. P. 173.

4. Сидоров В.Г., Шмидт Н.М. // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физ.-мат. науки. 2013. № 2(170). С. 71.
5. Гаркавенко А.С., Мокрицкий В.А., Маслов О.В., Соколов А.В. и др. // Наука и техника. 2020. Т. 19. № 4. С. 311.
6. Близнюк В.В., Коваль О.И., Паршин В.А. и др. // Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та. 2018. № 6. С. 1860501.
7. Близнюк В.В., Березовская Н.В., Брит М.А. и др. // Учен. зап. физ. фак-та Моск. ун-та. 2016. № 5. С. 165303.
8. Koval O.I., Rzhanov A.G., Solovyev G.A. // Phys. Wave Phenom. 2013. V. 21. No. 4. P. 287.
9. <http://www.holography.ru/files/holmich.htm#top>.
10. Адамов А.А., Баранов М.С., Храмов В.Н. // Науч.-техн. Вест. ИТМО. 2018. Т. 18. № 3. С. 356.
11. Ржанов А.Г. // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 1. С. 6; Rzhanov A.G. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No. 1. P. 1.
12. Rzhanov A.G. // EPJ Web Conf. 2019. V. 220. Art. No. 02013.
13. Ржанов А.Г. // Изв. РАН. Сер. физ. 2018. Т. 82. № 11. С. 1508; Rzhanov A.G. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2018. V. 82. No. 11. P. 1371.
14. Пономарев Д.С., Васильевский И.С., Галиев Г.Б. и др. // ФТП. 2012. Т. 46. № 4. С. 500; Ponomarev D.S., Vasil'evskii I.S., Khabibullin R.A. et al. // Semiconductors. 2012. V. 46. No. 4. P. 484.

Coherence of high-power laser diodes radiation and their spectral-spatial characteristics

A. G. Rzhanov*

Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia

**e-mail: rjanov@mail.ru*

Possible physical mechanisms affecting the coherence length of the radiation of high-power laser diodes during their slow degradation are considered. The relationship between the coherence of radiation during laser degradation and the spatial-spectral separation of high-power laser radiation into separate generation channels is discussed.

УДК 621.385.69

ВЛИЯНИЕ ГЕОМЕТРИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ ДВУХСЕКЦИОННЫХ ОСЕСИММЕТРИЧНЫХ СВЕРХРАЗМЕРНЫХ РЕЛЯТИВИСТСКИХ ДИФРАКЦИОННЫХ ГЕНЕРАТОРОВ НА ИХ ВЫХОДНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ

© 2023 г. О. В. Галлямова¹, *, С. В. Худяков¹

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова”, физический факультет, Москва, Россия

*E-mail: gallyamova@physics.msu.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Рассмотрено влияние изменения длины трубы дрейфа двухсекционной структуры осесимметричного релятивистского дифракционного генератора на выходную мощность и устойчивость генерации. Проведено сравнение распределения напряженности электрического поля для структур с двумя типами неоднородности: синусоидальная гофрировка и “полуторы на пьедестале”.

DOI: 10.31857/S0367676522701058, EDN: MDPWUW

ВВЕДЕНИЕ

Мощные источники СВЧ-излучения имеют широкое практическое применение: они используются в связи, энергетике, средствах радиоэлектронной борьбы, исследовании материалов, воздействии на биосистемы и других отраслях. Применение источников СВЧ-излучения в научных, гражданских и военных областях постоянно расширяется. Наибольшую эффективность при длительности импульса излучения, сравнимой с длительностью импульса тока, показали осесимметричные устройства с поперечными размерами, значительно превышающими рабочую длину волны, в которых необходимо учитывать когерентное излучение релятивистских электронных потоков в сверхразмерных электродинамических структурах. Особенностью рассматриваемых типов источников микроволнового излучения является то, что сильнотоочный электронный поток коренным образом изменяет резонансные свойства электродинамической системы и структуру возбуждаемых полей. В релятивистских дифракционных генераторах (РДГ), рабочий режим которых лежит на частотах вблизи границы второй полосы прозрачности, увеличение длительности импульса достигается благодаря взаимодействию пучка с объемными волнами во всем объеме пространства взаимодействия замедляющей системы. Проблема неустойчивости процесса установления генерации решается благодаря секционированию структуры. Именно на 2-секционном волноводе со сверхразмерной структурой “полу-

торы на пьедестале” был достигнут рекордный уровень мощности в 4.5 ГВт при КПД в 30% [1]. В настоящей работе отношение среднего диаметра структуры D к длине волны λ генерируемого излучения колеблется в диапазоне от 7 до 8. В целях повышения эффективности и устойчивости генерации в дальнейших экспериментах представляет интерес выяснение зависимостей выходных характеристик генерации в двухсекционных РДГ от геометрических параметров структуры, таких как длины секций и соотношения между ними. Это должно внести вклад в построение оптимальной геометрии устройств. В данной работе численно исследуется влияние длины трубы дрейфа и выбор формы неоднородности в двухсекционной структуре РДГ на мощность излучения и устойчивость генерации.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

При построении численной модели рассматривалось решение краевой задачи для аксиально-симметричных волн ТМ-поляризации в цилиндрической системе координат, продольная ось z которой совпадает с осью симметрии периодической структуры с периодом d . Вид замедляющей структуры с одним из рассматриваемых типов неоднородностей “полуторы на пьедестале” приведен на рис. 1, вверху. В качестве модели источника возбуждения было выбрано поле распространяющегося вблизи стенки тонкого трубчатого электронного потока радиусом R_b , который

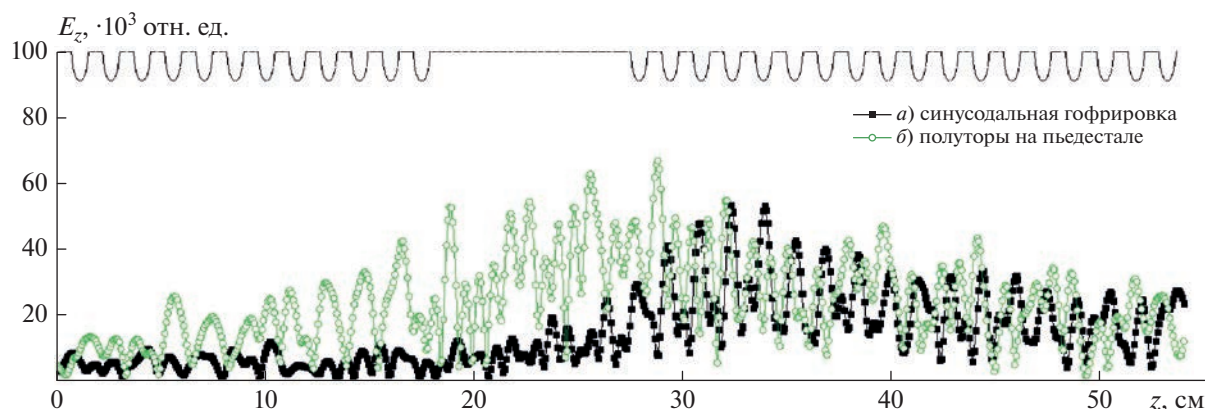


Рис. 1. Продольное распределение продольной компоненты E_z по линии $r = 3.825$ см для двух типов неоднородности: синусоидальная гофрировка (а); полустолбы на пьедестале (б). Длины секций 12 и 18 периодов (18 и 27 см), $R_{max} = 5.55$ см, длина трубы дрейфа $L = 7$ см, $2d/\lambda = 1.892$.

транспортируется внутри структуры во внешнем постоянном однородном магнитном поле, силовые линии которого параллельны оси системы. В области, где распространены источники, падающее, полное и отраженное поля должны удовлетворять системе уравнений Максвелла с граничными условиями на идеально проводящей поверхности замедляющей структуры и условиями излучения на бесконечности.

МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

С математической точки зрения поставленная выше задача — это задача дифракции поля на периодических неоднородностях. Для ее решения разработано несколько методов. Первый из применявшихся нами был метод интегральных уравнений [2]. В рамках этого метода возбуждающий структуру поток считался промодулированным на заданной частоте, и с учетом поляризации возбуждающего поля волной электрического типа E_{0m} стационарная задача от векторной для однородных уравнений Максвелла сводилась к скалярной для уравнения типа Гельмгольца относительно азимутальной компоненты магнитного поля H_ϕ

$$\frac{\partial^2 H_\phi}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial H_\phi}{\partial \rho} + \frac{\partial^2 H_\phi}{\partial z^2} + \left(k^2 - \frac{1}{\rho^2} \right) H_\phi = 0. \quad (1)$$

Далее с использованием аппарата сопряженных дифференциальных операторов и при переходе к неоднородному уравнению с учетом распределения источников возбуждающего поля осуществлялся переход к уравнению, позволяющему выразить величину полного поля в объеме через его значения на поверхности. Оно является интегральным уравнением Фредгольма II рода с ядром в виде функции источника для свободного пространства, зависящим только от расстояния

между точками наблюдения (M) и интегрирования (P):

$$H_\phi(M) = \frac{1}{2\pi} \int_L (G(M, P) \frac{\partial H_\phi(P)}{\partial n_P} - H_\phi(P) \left(\frac{\partial G(M, P)}{\partial n_P} - \frac{1}{\rho} G(M, P) \cos(\widehat{n, \rho}) \right)) dl_P - \frac{1}{2\pi} \int_S G(M, P) f(P) dq_P, \quad (2)$$

где n — нормаль к поверхности контура L .

Здесь $G(M, P)$ — фундаментальное решение уравнения (1) для свободного пространства, представимое в виде интеграла по азимутальной координате ϕ :

$$G(M, P) = \rho_M \int_0^{2\pi} \frac{e^{ikR}}{R} \cos \phi d\phi, \quad (3)$$

$$R = \sqrt{\rho_M^2 + \rho_P^2 - 2\rho_M \rho_P \cos \psi + (z_M - z_P)^2},$$

где R — расстояние между точками интегрирования (M) и наблюдения (P), ψ — угол между азимутальными координатами точек M и P : $\psi = \phi_M - \phi_P$.

С помощью математического аппарата сопряженных операторов это уравнение преобразуется в операторный вид и затем интегрируется по объему, ограниченному контуром, который совпадает с границами замедляющей структуры. В результате преобразований получается обобщенное интегральное уравнение Фредгольма II рода:

$$H_\phi(M) = \frac{1}{2\pi} \int_L (G(M, P) \frac{\partial H_\phi(P)}{\partial n_P} - H_\phi(P) \left(\frac{\partial G(M, P)}{\partial n_P} - \frac{1}{\rho} G(M, P) \cos(n, \rho) \right)) dl_P - \frac{1}{2\pi} \int_S G(M, P) f(P) dq_P. \quad (4)$$

Его решение задает распределение компоненты H_ϕ электромагнитного поля, величина которого пропорциональна значениям токов, наведенных на внутренней поверхности структуры. Последнее слагаемое в уравнении определяется полем, создаваемым в объеме системы. Полученное интегральное уравнение преобразуется в систему линейных уравнений, записанную в матричном виде $AX = B$, где элементы матрицы A соответствуют параметрам поля на поверхности, а столбец “правых частей” B — значениям поля источников, распределенных в объеме замедляющей структуры. По результатам решения данной системы можно определить значения амплитуд наведенных токов, которые используются затем для построения РЧХ структуры.

Поиск режимов резонансного отклика структуры на возбуждение предварительно промодулированным на заданной частоте сильноточным потоком производился методом электронного зонда [3], который заключается в следующем: при фиксированном продольном волновом числе k_z варьируется величина скорости v , при этом частота модуляции $\omega = k_z v_z$ выбирается так, чтобы для различных скоростей волновое число было постоянным. Затем меняется волновое число, и процедура повторяется для нового k_z . В результате мы получаем набор данных, благодаря которому можем осуществлять вариацию нормированной частоты ω при постоянной скорости потока. На основе полученных данных были построены графики зависимости максимумов J_{max} наведенных на поверхностях токов от нормированной частоты $\omega = 2d/\lambda$, т.е. резонансно-частотные характеристики (РЧХ) структуры.

При построении нестационарной математической модели самосогласованного взаимодействия потока и поля использовался матричный многомодовый метод, разработанный в [4] и являющийся одним из вариантов метода поперечных сечений.

В его основе лежит представление произвольного нерегулярного цилиндрического волновода в виде последовательности участков гладких волноводов и построение матрицы трансформации полей от входного к выходному концу структуры. В пределах каждого участка фиксированного радиуса, обозначенного номером s , вихревые электрическое и магнитное поля разлагались по полной для решения уравнений Максвелла системе функций — прямым и обратным волнам гладкого волновода:

$$\begin{aligned} \vec{E}_{b,s} &= \sum_{n=1}^N \left[C_{n,s}^+(z,t) E_{n,s}^+ + C_{n,s}^-(z,t) \vec{E}_{n,s}^- \right], \\ \vec{H}_s &= \sum_{n=1}^N \left[C_{n,s}^+(z,t) \vec{H}_{n,s}^+ + C_{n,s}^-(z,t) \vec{H}_{n,s}^- \right], \end{aligned} \quad (5)$$

где $C_{n,s}^\pm(z,t)$ — комплексные коэффициенты разложения, $E_{n,s}^\pm, \vec{H}_{n,s}^\pm$ — векторы электрического и магнитного поля моды E_{0n} , N — число рассматриваемых мод. Сшивание полей на скачке радиуса волновода производится с учетом непрерывности потока вектора Умова—Пойнтинга. После подстановки разложений (5) в уравнения Максвелла уравнения возбуждения электромагнитного поля электродинамической системы РДГ записываются в матричном виде относительно векторов $\vec{x}^\pm = (C_1^\pm, C_2^\pm, \dots, C_N^\pm)$ и приводятся к системе матричных уравнений, удобной для численного анализа с помощью метода прогонки. Процессы в электронном пучке описываются с помощью модели крупных частиц в форме бесконечно тонких колец с зарядом $q = \frac{2\pi J}{\omega M_k}$ и массой $m = m_0 \frac{q}{e}$, где m_0, e — масса и заряд электрона, M_k — число частиц, приходящееся на длину волны.

Для каждой крупной частицы в пренебрежении силами пространственного заряда записывается релятивистское уравнение движения $\frac{dp}{d\tau} = \frac{q}{\omega} \text{Re}(E_{bz} e^{i\tau})$, в котором $p = mv_0\gamma$ — импульс крупной частицы, $\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{v_0}{c}\right)^2}}$ — релятивистский фактор, $\tau = \omega t$ — нормированное время, E_{bz} — продольная составляющая напряженности вихревого поля.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Из ограничений метода интегральных уравнений можно указать требование достаточной гладкости поверхности, его достоинство в скорости и возможности рассматривать также открытые системы с многосвязным контуром поверхности [5], в то время как метод поперечных сечений применяется для односвязных контуров и особенно эффективен при наличии участков гладкого волновода. Синусоидально гофрированная поверхность, несмотря на отсутствие участков разбивания фиксированного радиуса, удовлетворяет требованиям как первого, так и второго из рассмотренных методов. Это позволило для этой поверхности реализовать сравнение двух методов расчета. Такое исследование было проведено в [6], где было показано, что положение резонансных пиков на построенных двумя этими методами РЧХ в односекционной синусоидально гофрированной структуре имели отличия не более чем на 5%.

В настоящей работе сравнение по видам формы неоднородности замедляющей структуры

проводилось для двух типов экспериментально реализованных поверхностей реальных двухсекционных РДГ [1]: структур с синусоидальной гофрировкой и с неоднородностями типа полутора на пьедестале. Поскольку точное геометрическое сравнение этих двух типов структур затруднительно, то было лишь обеспечено равенство таких параметров, как минимальный и максимальный радиус структуры, длины соответствующих секций и трубы дрейфа, период структуры.

На рис. 1 представлен один из результатов сравнительного эксперимента по выяснению вида распределения продольной компоненты электрического поля от длины трубы дрейфа в структурах с неоднородностями двух указанных видов: а) синусоидальная гофрировка и б) “полуторы на пьедестале”. Нормированная частота соответствовала максимальному резонансному пику РЧХ рассмотренной структуры, а именно $2d/\lambda = 1.892$. Длина трубы дрейфа составляла 7 периодов. Продольные распределения выводились по линиям вдоль оси волновода вблизи канала транспортировки электронного пучка. Из сравнения двух графиков видно, что в структуре “полуторы на пьедестале” достигается большее по амплитуде значение величины поля по сравнению с синусоидально гофрированной структурой, максимум распределения расположен ближе к началу второй секции, т.е. при данном отношении длин секций ближе к центру структуры. На графиках поперечных распределений для синусоидальной структуры в начале 2-й секции волновода (не указаны на рис. 1) наблюдалась трансформация аксиально-симметричной моды к моде с меньшим индексом, в то время как для “полуторов на пьедестале” сохраняется структура объемной моды с тем же индексом, что и на входе и выходе из структуры.

Основной целью настоящей работы было выяснить влияние длины трубы дрейфа на характеристики работы РДГ. В вычислительном эксперименте варьировалось значение этой длины при постоянных значениях длин секций и диаметра структуры. В частности, использовалась двухсекционная структура с длиной первой секции 12 периодов, второй — 18 периодов. Соотношение между длинами секций 1 : 1.5 было выбрано на основании исследования [7], чтобы обеспечить условия устойчивости генерации при максимальной выходной мощности. Мы перешли к варьированию величины трубы дрейфа с дробным отношением величины периода шагом. В частности, в нашем эксперименте максимальный радиус составлял $R_{max} = 5.55$ см, минимальный радиус $R_{min} = 5.1$ см, период структуры $d = 1.5$ см, величину трубы дрейфа мы изменяли в пределах значений от 7 до 11 периодов с шагом в 0.05 периода или 0.75 мм.

На первом этапе были получены РЧХ вблизи границы второй полосы прозрачности в интервале нормированных частот $2d/\lambda$ от 1.7 до 2.0 и определены значения частот резонансных пиков в зависимости от величины длины трубы дрейфа. Для каждого значения длины из указанного интервала были определены значения частот этих резонансных пиков $J_{max}(2d/\lambda)$.

Все возникающие пики могут быть представлены на так называемой частотной диаграмме, то есть массив таких упорядоченных наборов значений резонансных частот структуры укладывается на диаграмму в координатах “нормированное волновое число $2d/\lambda$ ” — “длина трубы дрейфа $L_{тр.др}$ ”. Каждый такой набор точек на диаграмме соответствует резонансным пикам РЧХ для определенного значения длины, и на графике эти точки выстроены вдоль вертикальных прямых, возрастая вместе с ростом нормированного волнового числа. По мере последовательного увеличения длины трубы дрейфа в эксперименте состав и положение резонансных пиков на РЧХ изменяется, что связано с последовательным открытием продольных колебательных мод и их конкуренцией.

Можно отметить возникновение пиков двух видов: часть из них сдвигается вниз по шкале нормированных частот по мере увеличения длины трубы дрейфа, тогда как есть и неизменные по положению пики, в которых нормированная частота $2d/\lambda$ меняется слабо с изменением длины трубы дрейфа, так что ее значение можно считать практически постоянным во всем изученном диапазоне длин. С целью выделить механизмы, отличающие такое поведение двух типов пиков, были построены поперечные и продольные распределения компонент электрического поля в пространстве взаимодействия потока и поля для двух случаев.

На рис. 2 представлены графики распределений для двух близких значений длины трубы дрейфа $L_{тр.др} = 9.45d$ и $L_{тр.др} = 9.55d$ в ближайшем к 2π -виду резонансном пике, сохраняющем свое значение при плавном изменении длины трубы дрейфа (рис. 2а) и в движущемся пике (рис. 2б).

Поперечные распределения строились для сечений структуры в начале и в конце первой секции, в середине трубы дрейфа, а также в начале и в конце второй секции. Продольные распределения выводились по линиям внутри волновода по линии вдоль оси на расстоянии $r = 5.425$ см от нее между электронным пучком и внутренней поверхностью структуры. Из графиков видно, что амплитуда напряженности продольной компоненты электрического поля E_z имеет максимум в середине 2 секции волновода, значение этого максимума растет с уменьшением длины трубы дрейфа. Из характера продольного распределения поля можно сделать вывод, что наблюдается

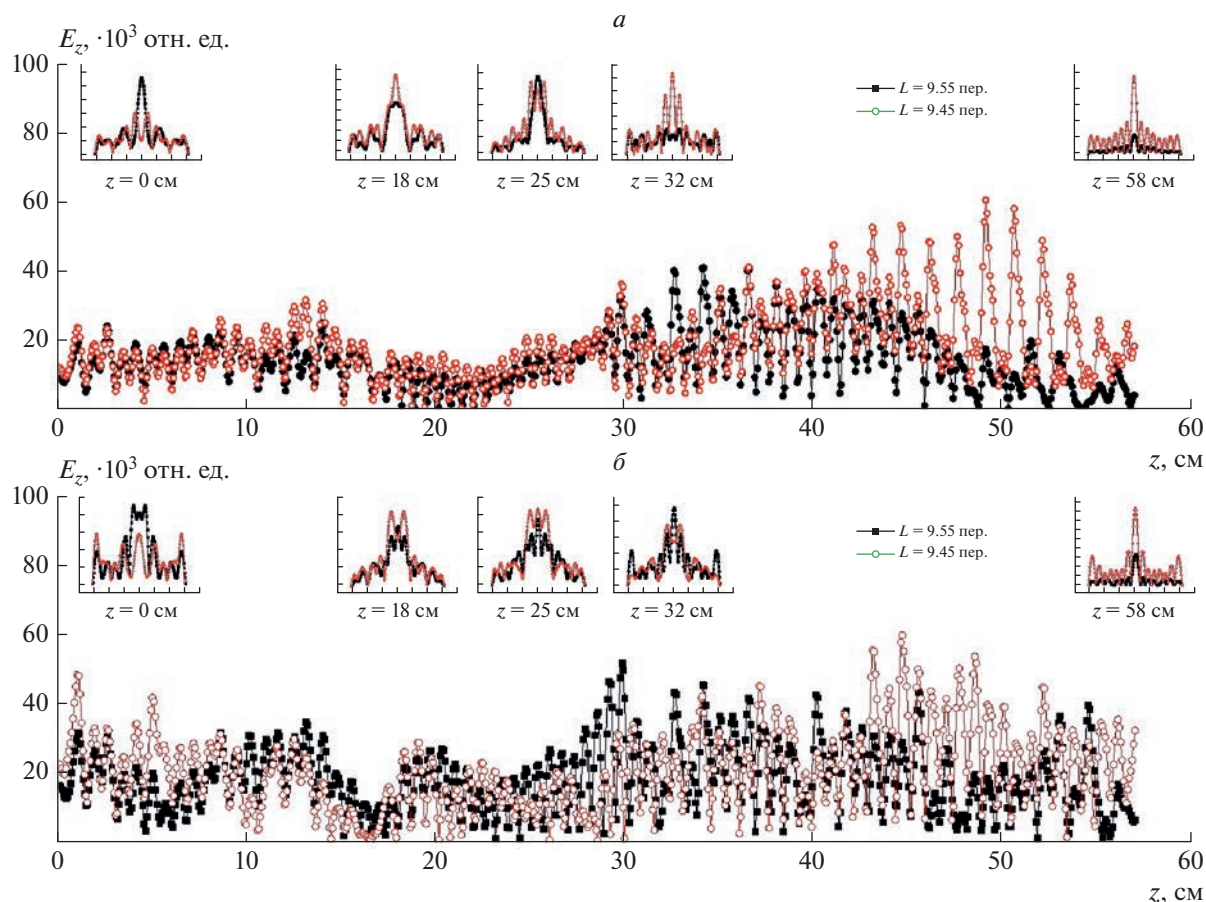


Рис. 2. Продольное распределение продольной компоненты E_z по линии $r = 5.425$ см для двух значений длины трубы дрейфа L и для двух значений нормированной частоты: $2d/\lambda = 1.924$ (а), 1.938 (б). Длины секций 12 и 18 периодов (18 и 27 см), $R_{\max} = 7.0$ см.

вынос энергии вперед и сдвиг точки кинематического синхронизма в сторону режима бегущей волны. Когда частота сохраняет свое значение при различных длинах трубы дрейфа — суперпозиция объемной моды с поверхностной волной наблюдается только на входе в структуру. Мода трансформируется от входа к выходу структуры. При сдвиге частоты резонансного пика поверхностная волна вносит значительный вклад по всей длине структуры. Именно она поддерживает связь поля структуры с потоком, обеспечивая условия синхронизма.

Завершающий этап работы был посвящен нахождению зависимости средней выходной мощности от длины трубы дрейфа. В статье [8] было показано, что длина трубы дрейфа влияет на мощность и модовый состав колебаний в МВЧГ. Мы также исследовали среднюю мощность $P_{\text{ср}}$ в рабочих режимах РДГ при вычислениях в самосогласованном режиме, усредняя значения мощности на интервале времени от 150 до 400 итераций. Вариации по длине трубы дрейфа составили от 7 до 11 периодов структуры. Из полученного таким

образом графика зависимости $P_{\text{ср}}(L_{\text{тр. др.}})$ следует, что изменение средней мощности носит квазипериодический характер с частотой примерно в 3 раза выше частоты структуры неоднородностей.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

При исследовании двухсекционных осесимметричных периодических замедляющих структур с неоднородностями типа “синусоидальной гофрировки” и “полторы на пьедестале” в качестве составных частей РДГ мы пришли к следующим выводам: при варьировании длины трубы дрейфа на малые значения в интервале периода структуры изменение средней выходной мощности имеет квазипериодический характер; путем варьирования длины трубы дрейфа при постоянных величинах длин секций можно добиться повышения мощности и устойчивости работы РДГ; в двухсекционных гофрированных структурах открытие волноводных мод происходит не только в процессе изменения радиуса, но и при изменении длины трубы дрейфа; в замедляющей структуре

типа “полуторы на пьедестале” продольная компонента напряженности электрического поля E_z распределена более равномерно вдоль длины и объема структуры по сравнению со структурой с синусоидальной гофрировкой.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бугаев С.П., Канавец В.И., Кошелев В.И., Черепенин В.А. Релятивистские многоволновые СВЧ-генераторы. Новосибирск: Наука. 1991. 293 с.
2. Slepko A.I., Gallyamova O.V. // Phys. Wave Phenom. 2010. V. 18. No. 2. P. 105.
3. Канавец В.И., Сlepков А.И., Федоров А.В. // Вестник МГУ. Сер. 3. Физ. и астроном. 1990. Т. 31. № 4. С. 30.
4. Сlepков А.И. // Изв. РАН. Сер. физ. 2003. Т. 67. № 12. С. 1678.
5. Худяков С.В. Галлямова О.В. // Учен. зап. физ. факта МГУ. 2022. № 1. С. 2211201.
6. Slepko A.I., Gallyamova O.V. // Proc. Int. Conf. Days on Diffraction. (Saint-Petersburg, 2009). P. 172.
7. Сlepков А.И., Галлямова О.В. // Вестник МГУ. Сер. 3. Физ. и астроном. 2009. № 4. С. 30.
8. Корниенко В.Н., Черепенин В.А. // Изв. вузов. Физ. 2014. Т. 57. № 12/2. С. 216.

Effect of geometric parameters of two-section axisymmetric overdimensional relativistic diffraction generators on their output characteristics

O. V. Gallyamova^{a, *}, S. V. Khudyakov^a

^a Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia

*e-mail: gallyamova@physics.msu.ru

The effect of variation the length of drift tube of two-section structure of axisymmetric relativistic diffraction generator on its output power operation and sustainability of generation is considered. A comparison is made of the electromagnetic field strength distribution for structures with two types of discontinuity: sinusoidal corrugation and half-torus on pedestal.

УДК 542.34

ФОРМИРОВАНИЕ И ПРИМЕНЕНИЕ ГОЛОГРАММЫ ШИРОКОПОЛОСНОГО ИСТОЧНИКА ЗВУКА В ОКЕАНИЧЕСКИХ ВОЛНОВОДАХ

© 2023 г. В. М. Кузькин¹, С. А. Пересёлков², *

¹Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Федеральный исследовательский центр
“Институт общей физики имени А.М. Прохорова Российской академии наук”, Москва, Россия

²Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Воронежский государственный университет”, Воронеж, Россия

*E-mail: pereselkov@yandex.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Изложены физико-математические принципы голографической интерферометрии обработки широкополосных сигналов в океанических волноводах. Рассмотрено применение голографической обработки для локализации малошумных подводных источников.

DOI: 10.31857/S036767652270106X, EDN: MDTIYY

ВВЕДЕНИЕ

Голографическая обработка основана на устойчивых структурных особенностях интерференционной картины (интерферограммы) звукового поля, формируемой широкополосным источником звука. Под интерферограммой понимается квадрат модуля принимаемого сигнала в переменных частота–время. Обработка реализует квазикогерентное накопление спектральной плотности принимаемого сигнала вдоль локализованных полос интерферограммы в переменных частота–время. Далее к интерферограмме применяется двумерное преобразование Фурье, т.е. записывается голограмма выделенного фрагмента излучения источника в параметрах частота–время. На голограмме сигнальная спектральная плотность локализуется в малой области. Накопление помехи вдоль интерференционных полос не когерентно, на выходе интегрального преобразования спектральная плотность помехи распределена по всей области голограммы. Эти два отличия записи сигнальной и помеховой информации на голограмме позволяют решать проблему обнаружения и идентификации малошумных источников, которые ранее другими методами обработки не поддавались решению. В обзоре изложены физико-математические принципы голографической обработки с использованием одиночных векторно-скалярных приемников (ВСП) и ее применения в области локализации малошумных источников звука. При изложении материала будем следовать работе [1].

ФОРМИРОВАНИЕ ИНТЕРФЕРОГРАММЫ

Скалярную компоненту поля источника (звукового давления) в точке приема запишем в виде произведения излучаемого спектра сигнала $S(\omega)$ и передаточной функции волновода $B(\omega, r, z)$

$$P(\omega, r, z) = S(\omega) B(\omega, r, z), \quad (1)$$

$$B(\omega, r, z) = \sum_m A_m(\omega, r, z) \exp[ih_m(\omega) r]. \quad (2)$$

Здесь A_m и h_m – амплитуда и постоянная пространства (вещественная часть горизонтального волнового числа) m -й моды, $\omega = 2\pi f$ – круговая частота, r – горизонтальное расстояние между источником и ВСП. Цилиндрическое расхождение поля, модальные затухания и глубины источника и приемника учитываются в амплитудах мод. Пусть на удалении r_1 положение интерференционного максимума поля приходится на частоту ω_1 . Тогда при выполнении неравенства

$$\frac{|S(\omega_1)|}{d|S(\omega_1)|/d\omega} \gg \frac{|B(\omega_1, r_1, z)|}{d|B(\omega_1, r_1, z)|/d\omega}$$

влиянием спектра излучаемого сигнала на формирование интерферограммы можно пренебречь, считая его равномерным [2]. Интерферограмма определяется только передаточной функцией волновода.

КОМПОНЕНТЫ ПОЛЯ ВЕКТОРНО-СКАЛЯРНОГО ПРИЕМНИКА

Горизонтальные компоненты колебательных скоростей частиц среды равны $V_x = V_r \cos \theta$, $V_y = V_r \sin \theta$, где

$$V_r = \frac{1}{\rho \omega} \sum_m A_m h_m(\omega) \exp[ih_m(\omega)r] \quad (3)$$

— колебательная скорость частиц в горизонтальной плоскости (x, y) . Здесь ρ — плотность водной среды, θ — угол (пеленг) между осью x ВСП и направлением на источник в горизонтальной плоскости [2]. Компоненты поля давления и горизонтальных колебательных скоростей $V_{x,y}$ синфазны между собой, вертикальная составляющая V_z смещена относительно них на фазу $(-\pi/2)$ [2]. При исследовании векторных полей широкое использование находит также вектор потока мощности, $\vec{W} = P\vec{V}$ [2].

ГОЛОГРАММА ДВИЖУЩЕГОСЯ ИСТОЧНИКА

Полагая выполнение условия (3), спектр источника опускается. В переменных частота—время (ω, t) введем для интерферограмм обозначения $I = |P(\omega, t)|^2$, $X = V_x(\omega, t)V_r^*(\omega, t)$, $Y = V_y(\omega, t)V_r^*(\omega, t)$, $R = |V_r(\omega, t)|^2$. Интерферограммы и голограммы скалярной и векторных компонент поля, а также их комбинаций, когерентны и различаются помехоустойчивостью [2]. Поэтому ограничимся рассмотрением голограммы звукового давления

$$F(\tau, \tilde{\nu}) = \int_0^{\Delta t} \int_{\omega_1}^{\omega_2} I(\omega, t) \exp[i(\tilde{\nu}t - \omega\tau)] dt d\omega = \sum_m \sum_n m_n(\tilde{\nu}, \tau) F, \quad (4)$$

где парциальная голограмма, обусловленная интерференцией m -й и n -й мод [3]

$$F_{mn}(\tau, \tilde{\nu}) = \exp\left[i\left(\frac{\tilde{\nu}\Delta t}{2} - \tau\omega_0\right)\right] \times \exp\left\{i\left[h_{mn}(\omega_0)\left(\frac{\Delta t}{2}w + r_0\right)\right]\right\} \times \sin\left[\left((r_0 + w\tau_*)\frac{dh_{mn}(\omega_0)}{d\omega} - \tau\right)\frac{\Delta\omega}{2}\right] \times \Delta\omega\Delta t A_m^* A_n^* \frac{\sin\left[\left((r_0 + w\tau_*)\frac{dh_{mn}(\omega_0)}{d\omega} - \tau\right)\frac{\Delta\omega}{2}\right]}{\left[\left((r_0 + w\tau_*)\frac{dh_{mn}(\omega_0)}{d\omega} - \tau\right)\frac{\Delta\omega}{2}\right]} \times \frac{\sin\left[\left[wh_{mn}(\omega_0) + \tilde{\nu}\right]\frac{\Delta t}{2}\right]}{\left[wh_{mn}(\omega_0) + \tilde{\nu}\right]\frac{\Delta t}{2}}, \quad (5)$$

Здесь $\tilde{\nu} = 2\pi$ и τ — круговая частота и время голограммы; Δt — время наблюдения; $\omega_{1,2} = \omega_0 \mp (\Delta\omega/2)$, ω_0 и $\Delta\omega$ — средняя частота и ширина спектра; r_0 — удаление источника в начальный момент времени $t = 0$; w — радиальная скорость источника; $h_{mn} = h_m - h_n$; $0 < t_* < \Delta t$.

Спектральная плотность (4) локализована в узкой полосе в форме фокальных пятен. Они расположены в первом и третьем квадрантах, когда источник приближается к приемнику ($w < 0$), и во втором и четвертом квадрантах, когда источник удаляется от приемника ($w > 0$). Область локализации содержит $(M - 1)$ основных максимумов (пиков) с координатами $(\tau_\mu, \tilde{\nu}_\mu)$, расположенными на прямой $\tilde{\nu}_\mu = \tilde{\epsilon}\tau_\mu$, где M — число мод, формирующих поле, $\mu = 1, M - 1$ — номер фокального пятна. Ближайший к началу координат пик, обусловленный интерференцией соседних мод, расположен в точке $(\tau_1, \tilde{\nu}_1)$. Координаты соседнего пика, вызванного интерференцией мод номеров $(m, m + 2)$, — $(\tau_2, \tilde{\nu}_2)$ и т.д. Координаты пика, обусловленного интерференцией первой и последней моды — $(\tau_{M-1}, \tilde{\nu}_{M-1})$. В точках с координатами $(\tau_\mu, \tilde{\nu}_\mu)$ суммируются $(M - \mu)$ основных пиков. Спектральная плотность (4) преимущественно сосредоточена в полосе, ограниченной прямыми линиями

$$\tilde{\nu} = \tilde{\epsilon}\tau + \delta\tilde{\nu}, \quad \tilde{\nu} = \tilde{\epsilon}\tau - \delta\tilde{\nu}, \quad \delta\tilde{\nu} = 2\pi/\Delta t. \quad (6)$$

Вне этой полосы спектральная плотность практически подавлена.

Радиальная скорость и начальное удаление источника от приемника связаны линейной зависимостью с координатами пиков фокальных пятен

$$\dot{w} = -\kappa_{w\mu} \tilde{\nu}_\mu, \quad \dot{r}_0 + \dot{w}\tau_* = \kappa_{r\mu} \tau_\mu, \quad (7)$$

$$\kappa_{w\mu} = \left[h_{m(m+\mu)}(\omega_0)\right]^{-1}, \quad (8)$$

$$\kappa_{r\mu} = \left[dh_{m(m+\mu)}(\omega_0)/d\omega\right]^{-1}.$$

Оценки параметров источника обозначены точкой сверху. Черта сверху означает усреднение по номерам мод.

На практике голографическая обработка реализуется сравнительно просто. За время наблюдения Δt в полосе излучения $\Delta\omega$ накапливаются J независимых реализаций сигнала длительностью T с временным интервалом между ними δT

$$J = \frac{\Delta t}{T + \delta T}. \quad (9)$$

Реализации независимы, если $\delta T > 2\pi/\Delta\omega$. Формируется интерферограмма и к ней применяется двумерное преобразование Фурье.

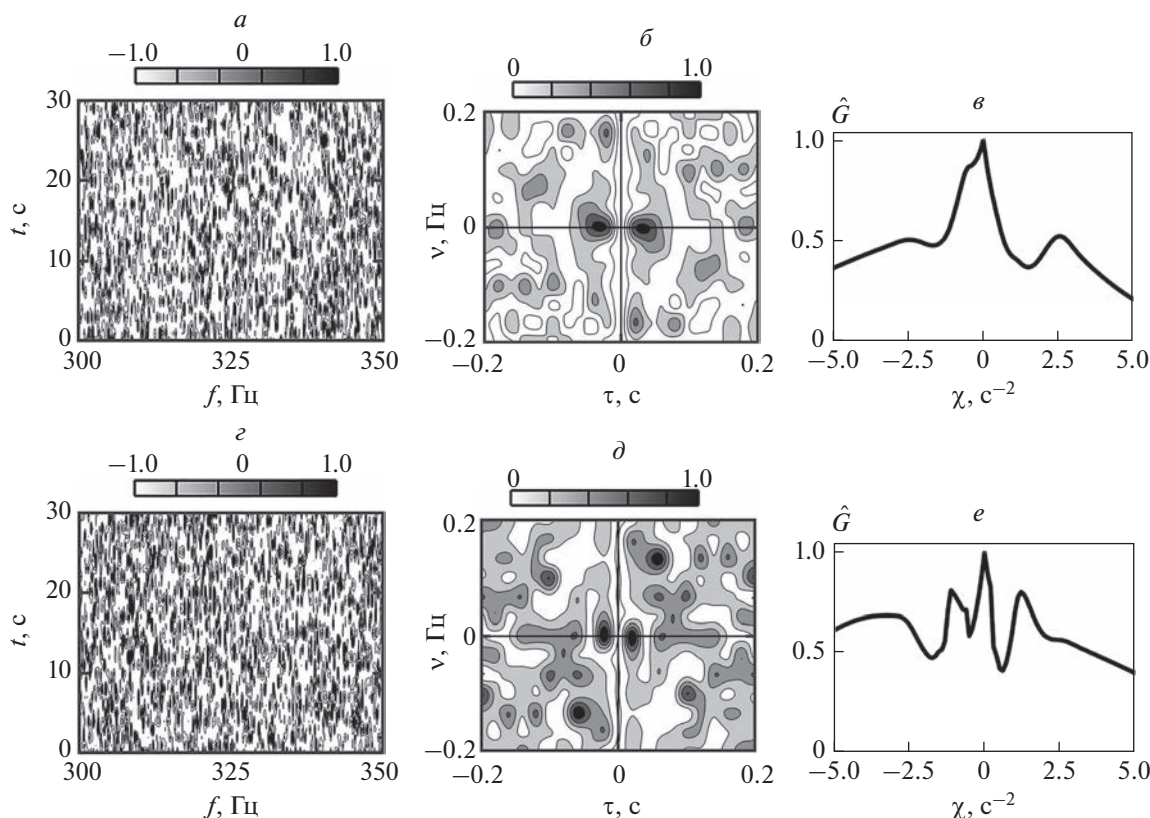


Рис. 1. Нормированные интерферограммы (а, з), голограммы (б, д) и функции обнаружения (в, е). Расстояния: 11.0 (а, б, в) и 11.5 км (з, д, е).

ЛОКАЛИЗАЦИЯ МАЛОШУМНОГО ИСТОЧНИКА

Обнаружение источника

В качестве критерия предельной дальности $r_{\max}$ обнаружения источника принимается условие, согласно которому максимум функции углового распределения спектральной плотности голограммы (функции обнаружения)

$$G[\tilde{\chi}, q_0(r)] = \int_0^{\Delta\tau} |F[\tau, \tilde{\nu}(\tau), q_0(r)]| \sqrt{1 + \tilde{\chi}^2} d\tau \quad (10)$$

в направлении $\tilde{\chi} = \tilde{\varepsilon}$ расположения пиков фокальных пятен сигнальной информации в два раза превышает помеховый уровень в направлениях $\tilde{\chi} \neq \tilde{\varepsilon}$,

$$G[\tilde{\varepsilon}, q_0(r_{\max})] = 2G[\tilde{\chi}, q_0(r_{\max})]. \quad (11)$$

Здесь $\Delta\tau$ — линейный размер области локализации по оси времени τ ; $\tilde{\chi}$ — варьируемое значение углового коэффициента; q_0 — входное отношение сигнал/помеха (с/п) [3]. Информация о передаточной функции не требуется.

Результаты голографической обработки для области предельных расстояний обнаружения

малозумного источника в численном эксперименте [4] показаны на рис. 1. На рис. 1а, 1з наблюдаются хаотические интерферограммы. На голограммах для расстояния $r = 11.0$ км (рис. 1б) имеет место структурированная картина фокальных пятен, которая становится случайной при расстоянии $r = 11.5$ км (рис. 1д). Оценка максимальной дальности обнаружения $r_{\max} = 11.0$ км, входное отношение с/п $q_0 = -10$ дБ.

Пеленгование источника

Запишем голограммы F_X, F_Y, F_R интерферограмм X, Y, R . Голограммы F_X, F_Y с точностью до множителей $\cos\varphi$ и $\sin\varphi$ воспроизводят голограмму F_R [5]. На первом шаге определяется отношение максимумов функций обнаружения

$$|\operatorname{tg}\theta(q_0)| = \frac{G_Y[\hat{\varepsilon}(q_0)]}{G_X[\hat{\varepsilon}(q_0)]}. \quad (12)$$

Определение направления на источник неоднозначно: значения пеленгов $\pm\theta$, $\pi \pm \theta$ неразличимы. На втором шаге области голограмм за пределами зоны локализации очищаются от помехи, и восстанавливаются интерферограммы X, Y, R .

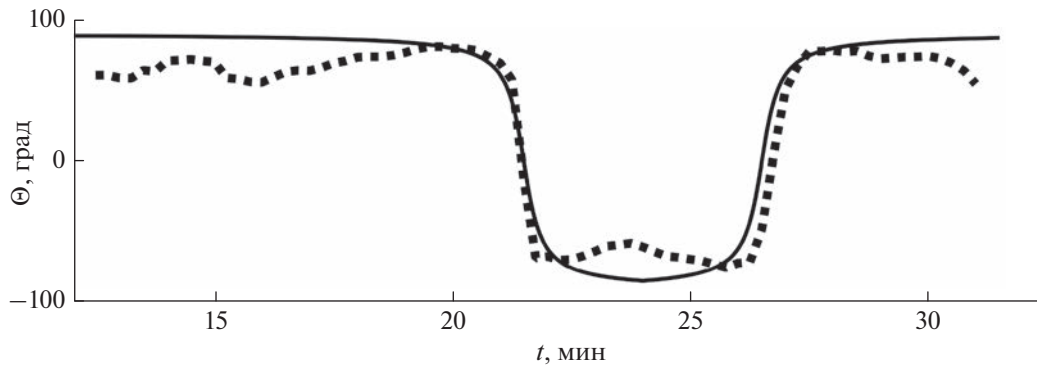


Рис. 2. Временная зависимость пеленга. Модельная зависимость — сплошная линия. Экспериментальная зависимость — пунктирная линия.

Неоднозначность пеленга автоматически устраняется при определении в фиксированный момент времени знака отношения интерферограмм

$$\frac{X(f)}{R(f)} = \cos \theta, \quad \frac{Y(f)}{R(f)} = \sin \theta. \quad (13)$$

Если $\cos \theta > 0$, $\sin \theta > 0$, то источник расположен в I-м квадранте ВСП; если $\cos \theta < 0$, $\sin \theta > 0$ — во II-м квадранте; если $\cos \theta < 0$, $\sin \theta < 0$ — в III-м квадранте; если $\cos \theta > 0$, $\sin \theta < 0$ — в IV-м квадранте.

Результаты пеленгования ВСП маломощного подводного источника в натурном эксперименте [6] представлены на рис. 2. В области траверса при прямом галсе (время ≈ 21 мин) и обратном галсе (время ≈ 27 мин) наблюдаются скачки пеленга, обусловленные изменением направления движения источника по отношению к ВСП.

Определение глубины

Информация о глубине источника z_s заключена в собственных функциях $\psi_m(z_s, f)$, т.е. содержится в амплитудах мод A_m . На голограмме спектральная плотность сигнала вырезается и к ней применяется обратное двумерное преобразование Фурье. Полученная интерферограмма подвергается одномерному преобразованию Фурье для восстановления огибающей сигнала, по которой далее определяются амплитуды мод. Оценка глубины z_s источника сводится к решению уравнения [7]

$$\Phi_{m(m+1)}(\dot{z}_s) = |\phi_{m(m+1)}(\dot{z}_s) - \beta_{m(m+1)}|, \quad (14)$$

$$\phi_{m(m+1)}(\dot{z}_s) = \frac{\Psi_m(\dot{z}_s, f_0) \Psi_m(z_q, f_0)}{\Psi_{m+1}(\dot{z}_s, f_0) \Psi_{m+1}(z_q, f_0)}, \quad (15)$$

$$\beta_{m(m+1)} = \frac{A_m}{A_{m+1}}.$$

Решение неоднозначное. Для избавления от некорректности выполняется совместная оценка глубины для разных пар отфильтрованных мод. Оценкой глубины будет значение, которое является общим для выбранных комбинаций. Метод оценки глубины источника малочувствителен к вариациям собственных функций и ошибкам измерений амплитуд мод.

ПОМЕХОУСТОЙЧИВОСТЬ ГОЛОГРАФИЧЕСКОЙ ОБРАБОТКИ

На выходе голографической обработки предельное отношение с/п q оценивается как [8]

$$q = J \gamma q_0, \quad (16)$$

где множитель J характеризует выигрыш в помехоустойчивости при временном накоплении спектральной интенсивности, а множитель $\gamma = S_n/S_s$. Здесь $S_{n,s}$ — площадь распределения спектральной плотности на голограмме помехи и сигнала соответственно. Оценка (16) справедлива при условии, что временное накопление спектральной плотности сигнала когерентно вдоль интерференционных полос, а для помехи — не когерентно. Такое накопление реализуется при выполнении неравенства $q_0 > q_{lim}$. В случае изотропной помехи для скалярной компоненты поля источника $q_{lim} = b/J^2$ [1]. Здесь $b \approx 1$ и $b \approx 1.5$ относятся к детерминированному и шумовому источникам. Использование векторных и комбинационных составляющих векторно-скалярного поля позволяет значение q_{lim} уменьшить в 4–5 раз [2].

Уменьшение входного отношения с/п q влечет за собой увеличение временных интервалов J , которое при фиксированном времени наблюдения Δt ограничено минимальной длительностью T_{min} сигнала [8]

$$T_{min} = 5r |(1/u_1(\omega_0) - (1/u_M(\omega_0)))|, \quad (17)$$

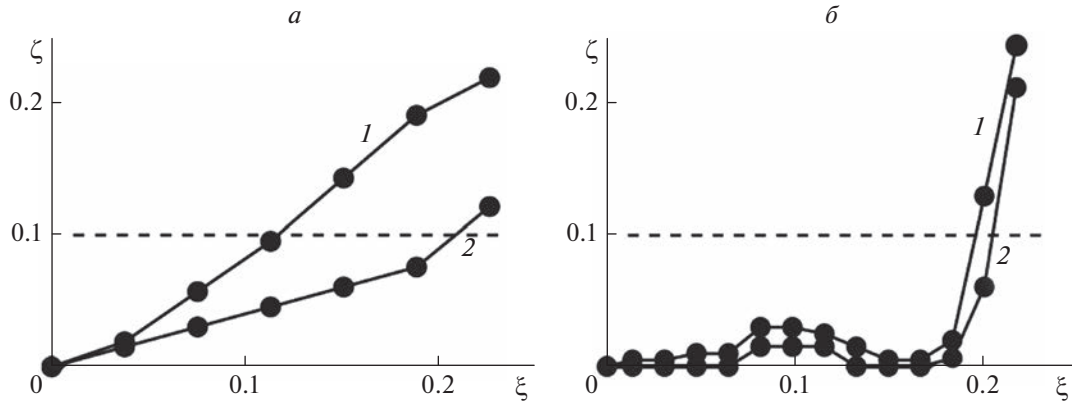


Рис. 3. Зависимости относительных изменений координат пика фокального пятна от относительных вариаций глубины волновода (а) и скорости звука (б). По оси абсцисс $\xi = |\Delta H|/H_0$ и $\xi = |\Delta c|/c_0$; по оси ординат: $\zeta = |\Delta \tau_1|/\tau_1$ (кривая 1) $\zeta = |\Delta v_1|/v_1$ (кривая 2).

так что с увеличением расстояния r и средней частоты спектра ω_0 минимальная длительность сигнала возрастает и уменьшается соответственно. Последнее связано с тем, что при возрастании частоты групповые скорости мод $u_m(\omega_0)$ асимптотически стремятся к постоянному значению, не зависящему от номера моды. Для входного отношения с/п q_0 оценка предельной дальности обнаружения источника равна

$$r_{\max} = \sqrt{\frac{q_0}{b}} \frac{\Delta t}{5 |dh_M(\omega_0)/d\omega|}. \quad (18)$$

Характерной чертой соотношения (18) является то обстоятельство, что в него входят параметры передаточной функции волновода, поэтому их физическое содержание различно в зависимости от выбора акватории.

УСТОЙЧИВОСТЬ ОБРАБОТКИ ПО ОТНОШЕНИЮ К ВАРИАЦИЯМ ПАРАМЕТРОВ ВОЛНОВОДА

В отсутствие помехи рассмотрим устойчивость оценок радиальной скорости $\dot{w}$ и удаления $\dot{r}$ источника при неточном задании глубины волновода H и скорости звука c в толще воды относительно параметров опорного волновода H_0 и c_0 . Анализ проведем раздельно: глубина волновода изменяется, скорость звука сохраняется и наоборот. Измененные параметры волновода обозначим как $H = H_0 + \Delta H$, $c = c_0 + \Delta c$. При проведении моделирования $\Delta H \geq 0$, $\Delta c \leq 0$.

Введем обозначения: $\dot{w}(H_0, c_0)$ и $\dot{r}(H_0, c_0)$ — оценки радиальной скорости и удаления источника в опорном волноводе; $\Delta \dot{w}(\Delta H, c_0)$ и $\Delta \dot{r}(\Delta H, c_0)$ — вариации радиальной скорости и

удаления источника при изменении глубины; $\Delta \dot{w}(H_0, \Delta c)$ и $\Delta \dot{r}(H_0, \Delta c)$ — вариации радиальной скорости и удаления источника при изменении скорости звука; $v_1(H_0, c_0)$ и $\tau_1(H_0, c_0)$ — координаты пика фокального пятна голограммы в опорном волноводе; $\Delta v_1(\Delta H, c_0)$ и $\Delta \tau_1(\Delta H, c_0)$ — смещения координат пика фокального пятна при изменении глубины; $\Delta v_1(H_0, \Delta c)$ и $\Delta \tau_1(H_0, \Delta c)$ — смещения координат пика фокального пятна при изменении скорости звука.

Оценим области допустимых отклонений ΔH от H_0 и Δc от c_0 , в которых выполнены неравенства

$$\begin{aligned} \frac{\Delta \dot{w}(\Delta H, c_0)}{\dot{w}(H_0, c_0)} &\leq 0.1, & \frac{\Delta \dot{r}(\Delta H, c_0)}{\dot{r}(H_0, c_0)} &\leq 0.1, \\ \frac{\Delta \dot{w}(H_0, \Delta c)}{\dot{w}(H_0, c_0)} &\leq 0.1, & \frac{\Delta \dot{r}(H_0, \Delta c)}{\dot{r}(H_0, c_0)} &\leq 0.1, \end{aligned} \quad (19)$$

рассматриваемые как критерии приемлемой эффективной устойчивости голографической обработки. При выполнении условий (19) относительные вариации координат пика фокального пятна при изменении параметров волновода удовлетворяют неравенствам [9]

$$\begin{aligned} \frac{\Delta v_1(\Delta H, c_0)}{v_1(H_0, c_0)} &\leq 0.1, & \frac{\Delta \tau_1(\Delta H, c_0)}{\tau_1(H_0, c_0)} &\leq 0.1, \\ \frac{\Delta v_1(H_0, \Delta c)}{v_1(H_0, c_0)} &\leq 0.1, & \frac{\Delta \tau_1(H_0, \Delta c)}{\tau_1(H_0, c_0)} &\leq 0.1. \end{aligned} \quad (20)$$

Результаты численного эксперимента [9] приведены на рис. 3, где горизонтальным пунктиром отмечена область относительных изменений координат пика фокального пятна, в которой выполнены условия (19). Из рис. 3а следует, что $\Delta H_r \leq 6.2$ м и $\Delta H_w \leq 11.2$ м. Нижние индексы “ r ”, “ w ” относятся к допустимым вариациям глуби-

ны и скорости звука при восстановлении расстояния и радиальной скорости источника в соответствии с критерием (19). В то же время из рис. 3б следует, что $\Delta c_r \leq 289.9$ м/с и $\Delta c_w \leq 343.7$ м/с.

В рамках критерия (19) относительные погрешности оценок радиальной скорости и удаления источника не превышают относительных вариаций глубины волновода и скорости звука в воде. Данный результат свидетельствует об устойчивости оценок параметров источника при неточном задании характеристик волновода. Устойчивость обработки объясняется формированием коэффициентов (8) через разности постоянных распространения и их производных по частоте для разных номеров интерферирующих мод.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Одной из наиболее важных проблем обработки гидроакустической информации является обеспечение высокой помехоустойчивости, совмещенной с малой чувствительностью к изменяющимся условиям распространения волнового поля в океанической среде. Трудности подхода к ее решению вытекают из ограниченности применяемых методов решения, не учитывающих интерференционную картину поля широкополосного источника. Как показали исследования последних лет, решение проблемы обеспечивает голографическая обработка, где играет роль интерференция волн широкополосного источника. Ее применение, особенности которой отражены в данном обзоре, позволило существенным обра-

зом продвинуться в решении задачи обнаружения и локализации малошумных источников.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 19-29-06075).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кузькин В.М., Матвиенко Ю.В., Пересёлков С.А. // Подводные исследования и робототехника. 2019. № 4(30). С. 49.
2. Казначеев И.В., Кузнецов Г.Н., Кузькин В.М., Пересёлков С.А. // Акуст. журн. 2018. Т. 64. № 1. С. 33; Kaznacheev I.V., Kuznetsov G.N., Kuz'kin V.M., Pereselkov S.A. // Acoust. Phys. 2018. V. 64. No. 1. P. 37.
3. Кузнецов Г.Н., Кузькин В.М., Пересёлков С.А. // Акуст. журн. 2017. Т. 63. № 4. С. 406; Kuznetsov G.N., Kuz'kin V.M., Pereselkov S.A. // Acoust. Phys. 2017. V. 63. No. 4. P. 449.
4. Казначеева Е.С., Кузькин В.М., Матвиенко Ю.В. и др. // Подводные исследования и робототехника. 2021. № 4(38). С. 80.
5. Kuznetsov G.N., Kuz'kin V.M., Lyakhov G.A. et al. // Phys. Wave Phenom. 2019. V. 27. No. 3. P. 237.
6. Матвиенко Ю.В., Хворостов Ю.А., Каморный А.В. и др. // Подводные исследования и робототехника. 2022. № 3(39). С. 4.
7. Kuznetsov G.N., Kuz'kin V.M., Pereselkov S.A., Prosovetskiy D.Yu. // Phys. Wave Phenom. 2016. V. 24. No. 4. P. 310.
8. Kuz'kin V.M., Lyakhov G.A., Pereselkov S.A. et al. // Phys. Wave Phenom. 2020. V. 28. No. 1. P. 68.
9. Pereselkov S.A., Kuz'kin V.M. // J. Acoust. Soc. Amer. 2022. V. 151. No. 2. P. 666.

Broadband sound source hologram formation and application in oceanic waveguides

V. M. Kuz'kin^a, S. A. Pereselkov^b, *

^a Prokhorov General Physics Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119991 Russia

^b Voronezh State University, Voronezh, 394006 Russia

*e-mail: pereselkov@yandex.ru

The physical and mathematical basics of holographic interferometry of broadband signal processing in oceanic waveguides are presented. The application of holographic processing for localization of low-noise sources is considered.

УДК 534.222

АНАЛИТИЧЕСКОЕ РЕШЕНИЕ ДЛЯ ДИФРАГИРУЮЩЕГО ИНТЕНСИВНОГО ГАУССОВСКОГО ПУЧКА В РАМКАХ МОДЕЛИ МОДУЛЬНОЙ НЕЛИНЕЙНОСТИ

© 2023 г. В. А. Гусев¹, *, Д. А. Жарков¹

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
“Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова”, физический факультет, Москва, Россия

*E-mail: vgusev@bk.ru

Поступила в редакцию 28.10.2022 г.

После доработки 15.11.2022 г.

Принята к публикации 26.12.2022 г.

Развита модель модульной нелинейности для расчета поля ограниченных акустических пучков большой интенсивности. Получено точное решение данной задачи. Продемонстрировано влияние дифракционных и нелинейных эффектов на временной профиль пучка. Показано, что при уменьшении апертуры образуется последовательность коротких положительных импульсов большой амплитуды, наблюдавшаяся экспериментально.

DOI: 10.31857/S0367676522701071, EDN: MDVEYB

ВВЕДЕНИЕ

Расчет временных профилей и пространственной структуры акустических пучков и полей большой интенсивности необходим во многих практически важных случаях, в частности в медицинских приложениях — ультразвуковой диагностике и терапии [1, 2]. Для выявления основных качественных особенностей трансформации временной и пространственной структуры пучков и их зависимости от начальных параметров и свойств среды желателен построение аналитических решений. Такие решения, как точные, так и приближенные, удается построить для многих одномерных задач нелинейной акустики [3, 4]. В то же время реальные источники являются источниками неоднородных волн, в первую очередь, ограниченных волновых пучков, которые для своего описания требуют применения трехмерных уравнений типа Хохлова—Заболотской (если волну можно считать узкополосным волновым пучком) либо Вестервельта (для волн с широким пространственным спектром). Возможности получения аналитических решений в этих случаях сильно ограничены. Поэтому даже такие классические задачи как дифракция на отверстии в экране и подобные ей для нелинейных волн аналитически изучены недостаточно полно. Характер влияния параметров волн и размеров экрана на пространственную структуру поля изучен не до конца. Отметим работу [5], в которой был проведен эксперимент по дифракции мощной нелинейной волны на экране. Как оказалось, при ди-

фракции нелинейной волны на узком экране профиль волны сильно меняется, искажается частотный спектр и зависимость амплитуд гармоник от их номера по сравнению с плоской волной. В частности, поле основной частоты сильно дифрагирует при прохождении через экран, так что в случае узкого отверстия поле дифрагированной волны состоит преимущественно из высших гармоник. Наиболее заметно изменяется временной профиль нелинейно-искаженной волны — вместо характерного пилообразного профиля формируется последовательность коротких положительных импульсов большой амплитуды. Численный анализ на основе уравнения Хохлова—Заболотской качественно подтвердил этот результат [5]. Однако конкретных выражений, описывающих характер изменения поля дифрагировавшей волны в зависимости от параметров задачи, и наглядного объяснения полученных результатов получено не было.

Продвинуться в направлении построения аналитических решений, позволяющих получить такие качественные зависимости, удастся при помощи моделей с нелинейностями модульного типа [6]. Такие модели успешно применялись для описания эффектов в кубично-нелинейных средах [7]. Основная идея состоит в качественной замене слагаемого с кубической нелинейностью на слагаемое с так называемой квадратично-кубической нелинейностью, т.е. вместо, например, слагаемого вида x^3 записывается слагаемое $x|x|$. Лег-

ко видеть, что качественное поведение этих двух зависимостей в целом близко. В то же время, вместо уравнения с кубичной нелинейностью получается уравнение фактически с квадратичной нелинейностью, для которого могут быть использованы известные подходы и решения. Но при этом будут получены решения с новым физическим смыслом. Аналогичная замена может использоваться и для слагаемых с квадратичной нелинейностью, когда слагаемое вида x^2 заменяется на $|x|$. В этом случае получается набор линейных уравнений, каждое из которых формально может быть точно решено. Новый физический смысл появляется при сшивании решений этих уравнений и построении разрывных решений. Тем самым, нелинейные эффекты не пропадают при переходе к системе линейных уравнений, а проявляются при сшивании их решений. Такой подход был успешно применен для построения решений для поверхностной волны на границе полупространства нелинейной среды [8]. В случае поверхностных волн нелинейность среды не позволяет перейти к записи точного дисперсионного уравнения для скорости волны; возможно только использование методов возмущения. Применение модели модульной нелинейности позволило получить точное решение, качественно описывающее трансформацию поверхностной волны на границе нелинейной среды.

УРАВНЕНИЯ ДЛЯ ОГРАНИЧЕННЫХ ПУЧКОВ С МОДУЛЬНОЙ НЕЛИНЕЙНОСТЬЮ

Поле ограниченных акустических пучков большой интенсивности обычно описывают с помощью уравнения Хохлова—Заболотской:

$$\frac{\partial}{\partial \tau} \left(\frac{\partial p}{\partial z} - \frac{\varepsilon}{\rho_0 c_0^3} p \frac{\partial p}{\partial \tau} \right) = \frac{c_0}{2} \left(\frac{\partial^2 p}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial y^2} \right), \quad (1)$$

где p — акустическое давление, $\tau = t - z/c_0$ — время в сопровождающей системе координат, ρ_0 и c_0 — равновесные плотность и скорость звука, ε — нелинейный параметр. В (1) предполагается, что пучок распространяется в направлении оси z и медленно изменяется в поперечной плоскости x, y .

Основная идея модели модульной нелинейности состоит в замене в (1) слагаемого с квадратичной нелинейностью на слагаемое с модульной нелинейностью. Для последовательного построения такого уравнения удобно исходить из более общего уравнения типа уравнения Вестерверльта:

$$\frac{\partial^2 p}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial y^2} - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} = -\frac{\varepsilon}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2}. \quad (2)$$

Произведем в (2) замену

$$\frac{\varepsilon}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 p^2}{\partial t^2} \rightarrow \frac{\varepsilon p^*}{\rho_0 c_0^4} \frac{\partial^2 |p|}{\partial t^2} \equiv \mu \frac{\partial^2 |p|}{\partial t^2}, \quad (3)$$

где μ — новый нелинейный параметр среды с модульной нелинейностью. Раскрывая модуль, получим систему линейных волновых уравнений для интервалов различной полярности:

$$\frac{\partial^2 p}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial y^2} - \frac{1}{c_\pm^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} = - \begin{cases} \mu \frac{\partial^2 p}{\partial t^2}, & p > 0, \\ -\mu \frac{\partial^2 p}{\partial t^2}, & p < 0. \end{cases} \quad (4)$$

Уравнения (4) могут быть записаны в виде обычного волнового уравнения

$$\frac{\partial^2 p}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial y^2} - \frac{1}{c_\pm^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} = 0 \quad (5)$$

с эффективной скоростью звука, различной для интервалов разной полярности:

$$c_\pm^2 = \frac{c_0^2}{1 \mp \mu c_0^2}, \quad (6)$$

где верхний знак относится к интервалам положительной полярности $p > 0$, а нижний — к интервалам отрицательной полярности $p < 0$. Отметим, что скорость c_+ при $p > 0$ оказывается выше, чем скорость c_0 в линейной среде, а c_- — меньше, что качественно совпадает со случаем квадратичной нелинейности. Теперь к уравнениям (5) могут быть применены стандартные методы решения и упрощения. В частности, переходя к новым переменным $\tau_\pm = t - z/c_\pm$ и применяя метод медленно изменяющегося профиля (ММИП), можно получить линеаризованные уравнения Хохлова—Заболотской для каждой из полярностей:

$$\frac{\partial^2 p}{\partial \tau_\pm \partial z} = \frac{c_\pm}{2} \left(\frac{\partial^2 p}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 p}{\partial y^2} \right). \quad (7)$$

В соответствии с видом уравнения (7) можно заключить, что вклад модульной нелинейности проявляется в двух факторах. Во-первых, импульсы разной полярности движутся с различными скоростями, т.е. профили смещаются относительно друг друга и необходимо проводить разрыв в области неоднозначности профиля. Во-вторых, дифракционное распыливание импульсов разной полярности будет различным за счет множителя $c_\pm$ в правой части (6). Стоит отметить, что отличие $c_\pm$ от c_0 в правой части (7) играет скорее роль поправки вследствие закладываемой ММИП плавности изменения профиля в поперечном направлении. В частности, если выводить уравнения (7) напрямую из уравнения (1), то в правой части получится множитель c_0 , а не $c_\pm$.

Применительно к замене квадратичной нелинейности на модульную (3) в случае ограниченных пучков нужно отметить следующее. В приосевой области пучка нелинейные искажения выражены сильно, при этом за счет более выраженного нелинейного затухания происходит сглаживание поперечного профиля пучка — так называемый эффект изотропизации диаграммы интенсивного пучка. В этом случае модель модульной нелинейности оправдана и эффективна. На периферии пучка, вдали от оси, его амплитуда мала, нелинейные эффекты слабы и могут быть рассчитаны методами возмущений. Применение модели модульной нелинейности в этом случае может завышать роль нелинейных эффектов. Это связано, в частности, с тем, что в случае квадратичной нелинейности возможен предельный переход к волнам бесконечно малой амплитуды, когда нелинейные эффекты плавно исчезают. В случае модульной нелинейности такой переход отсутствует и может достигаться только формальным уменьшением значения параметра μ . На практике наибольший интерес представляет поле на оси пучка, что и будет рассмотрено далее.

ДИФРАКЦИЯ ОГРАНИЧЕННОГО ПУЧКА В СРЕДЕ С МОДУЛЬНОЙ НЕЛИНЕЙНОСТЬЮ

Задачу дифракции нелинейной волны можно рассматривать в следующей постановке. Пусть излучается волна с некоторым поперечным распределением. Она испытывает нелинейные искажения и превращается в пилообразную. Затем

она падает на экран с отверстием или, в более общем случае, с амплитудной модуляцией. В частности, в работе [5] диаметр экрана был много меньше характерного поперечного размера пучка. После экрана распространение волны описывается уравнением (6). Для получения наиболее наглядных результатов удобно рассмотреть не экран с отверстием, а гауссовский пучок, заданный в плоскости $z = 0$. Граничное условие зададим в виде

$$p(t, z = 0, r) = p_0(t) \exp(-r^2/a^2),$$

причем временной профиль зададим в виде одиночной N -волны с характерными амплитудой A_0 и длительностью t_0 :

$$p_0 = \begin{cases} -A_0 \tau/t_0, & |\tau| < t_0 \\ 0, & |\tau| > t_0. \end{cases} \quad (8)$$

Характерная ширина пучка a формально играет роль эффективного радиуса отверстия. Удобство рассмотрения гауссового пучка состоит в возможности получения простых аналитических выражений для дифрагирующего поля.

Общее решение уравнений (7) на оси гауссовского пучка с произвольным профилем $p_0(t)$ имеет вид:

$$p = p_0(\tau_{\pm}) - \frac{2c_{\pm}^2}{a^2} \int_{-\infty}^{\tau_{\pm}} p_0(t) \exp\left(\frac{2c_{\pm}^2}{a^2}(t - \tau_{\pm})\right) dt,$$

для N -волны (8) получаем:

$$\frac{p}{A_0} = \begin{cases} 0, & T < -1, \\ \exp(-X(T_{\pm} + 1))(1 + 1/X) - 1/X, & -1 < T < 1, \\ \exp(-XT_{\pm})[(1 - 1/X)\exp(X) + (1 + 1/X)\exp(-X)], & T > 1. \end{cases} \quad (9)$$

Здесь введены безразмерные величины $T_{\pm} = \tau_{\pm}/t_0$ и $X = z/z_d$, где

$$z_d = a^2/2c_{\pm}t_0 \quad (10)$$

— характерная дифракционная длина. Решение (9) представляет собой искаженную из-за дифракции N -волну, у которой появился “хвост” позади заднего фронта. При $p > 0$ нужно выбрать решение с индексом “+”, при $p < 0$ — с индексом “−”. Зависимость от апертуры пучка входит в дифракционную длину и, следовательно, в безразмерное расстояние X . Тем самым, изменение апертуры при прочих равных условиях означает формально переход к другому безразмерному расстоянию X при фиксированном расстоянии. При этом уменьшение апертуры соответствует увеличению X , т.е. чем меньше апертура, тем больше X и силь-

нее искажение волнового профиля. Отметим также, что в z_d входит и скорость $c_{\pm}$, т.е., вообще говоря, безразмерные расстояния будут различными для разных полярностей. Поскольку c_- меньше, чем c_+ , то для отрицательной полярности X будет немного меньше и искажения несколько слабее.

На рис. 1 приведен исходный профиль N -волны (8) (пунктир) и решение (9) при $X = 1$ (штриховая линия), показывающее искажения профиля волны, обусловленные дифракцией. Видно, что импульс изменяется несимметрично: пиковое положительное значение остается равным 1, а пиковое отрицательное — уменьшается по величине. Интервал положительной полярности уменьшается, а отрицательной — увеличивается.

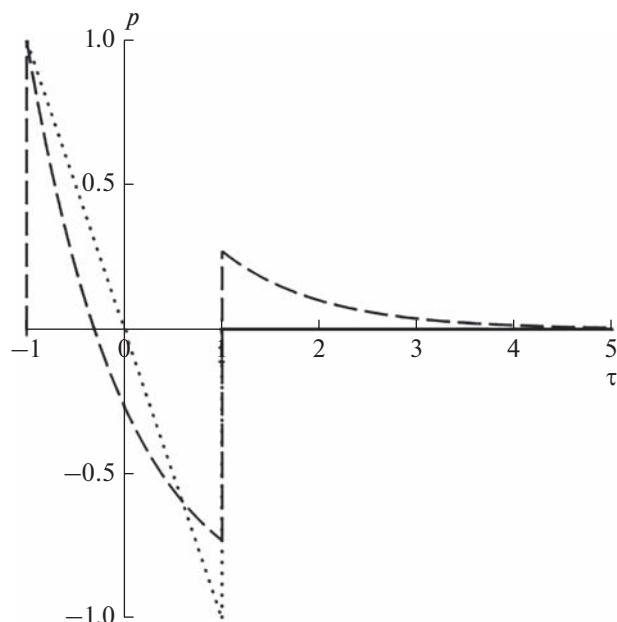


Рис. 1. Профиль исходной N -волны (8) (пунктир) и решения (9) (штриховая линия).

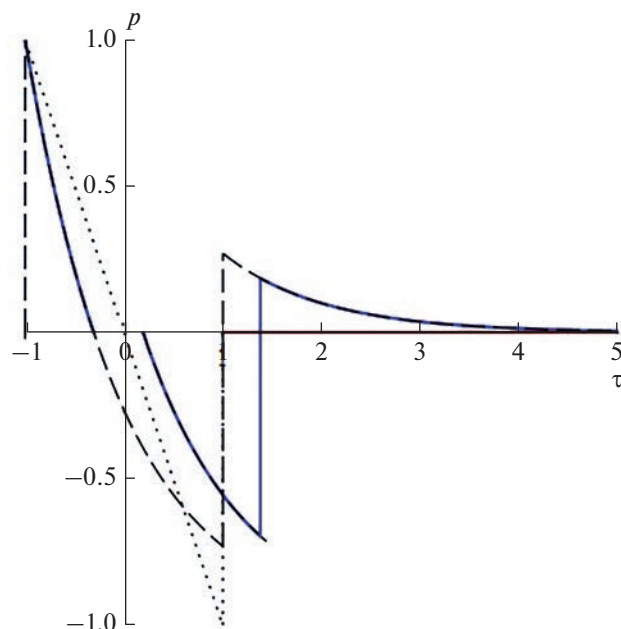


Рис. 2. Временной профиль пучка (синяя линия) при $X = 1$ в сравнении с выражениями (8) и (9) (см. рис. 1).

Далее в среде с модульной нелинейностью необходимо провести сшивание профилей для интервалов положительной и отрицательной полярностей. Профиль волны в интервале отрицательной полярности отстает от волны в интервале положительной полярности. Первый интервал положительной полярности с передним фронтом становится все более узким и отрывается от остальной части импульса. В области заднего фронта профили для интервалов различной полярности наезжают друг на друга. Образующаяся неоднозначность профиля должна быть устранена проведением разрыва (ударного фронта), положение которого определяется правилом равенства площадей, поскольку импульс волны сохраняется. В результате после проведения разрыва происходит взаимная компенсация и уменьшение пиковых положительного и отрицательного значений. Тем самым, достигаемое пиковое отрицательное значение уменьшается дополнительно за счет нелинейного затухания на ударном фронте. В итоге временной профиль состоит из узкого положительного импульса большой амплитуды и следующего за ним широкого отрицательного импульса сравнительно небольшой амплитуды. В случае исходной периодической N -волны можно ожидать, что профиль будет близок к последовательности таких узких положительных импульсов. Таким образом, уменьшение отрицательного пикового значения происходит за счет дифракционного искажения профиля и нелинейного затухания.

Проследим изменение профиля волны при изменении апертуры пучка. Чем апертура меньше, тем на меньших расстояниях X будет проявляться отмеченная выше динамика. На рис. 2 и 3 приведены временные профили (сплошные синие линии) на расстояниях $X = 1$ и $X = 3$. В области не-

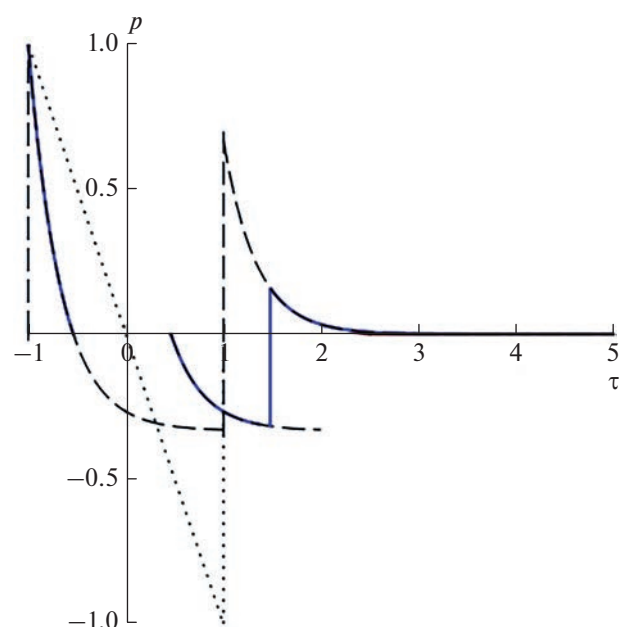


Рис. 3. Временной профиль пучка (синяя линия) при $X = 3$ в сравнении с выражениями (8) и (9) (см. рис. 1).

однозначности проведен разрыв на основании правила равенства площадей. Как видно, передний фронт становится все более резким, а плавные участки профиля исчезают. Подчеркнем, что переход от $X = 1$ к $X = 3$ в соответствии с (10) можно интерпретировать как уменьшение апертуры пучка в $\sqrt{3}$ раз при фиксированном расстоянии. Таким образом, при уменьшении апертуры пучка действительно должно наблюдаться образование последовательности коротких положительных импульсов большой амплитуды.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Развита модель среды с модульной нелинейностью для расчета неоднородных полей ограниченных акустических пучков. Эта модель, в частности, качественно описывает искажение пучков и в классических квадратично-нелинейных средах. Получено точное решение для поля на оси гауссовского пучка в среде с модульной нелинейностью. Проанализировано влияние апертуры пучка на его эволюцию и продемонстрирована тенденция к формированию временного профиля в виде последовательности положительных импульсов большой амплитуды при уменьшении апертуры. Этот эффект качественно совпадает с экспериментальными данными.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 20-02-00493).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Чупова Д.Д., Росницкий П.Б., Гаврилов Л.Р., Хохлова В.А. // Акуст. журн. 2022. Т. 68. № 1. С. 3; Chupova D.D., Rosnitskiy P.B., Gavrilov L.R., Khokhlova V.A. // Acoust. Phys. 2022. V. 68. No. 1. P. 1.
2. Гаврилов Л.Р., Сапожников О.А., Хохлова В.А. // Изв. РАН. Сер. физ. 2015. Т. 79. № 10. С. 1386; Gavrilov L.R., Sapozhnikov O.A., Khokhlova V.A. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2015. V. 79. No. 10. P. 1232.
3. Васильева О.А., Лапшин Е.А., Руденко О.В. // Акуст. журн. 2019. Т. 65. № 1. С. 3; Vasil'eva O.A., Lapshin E.A., Rudenko O.V. // Acoust. Phys. 2019. V. 65. No. 1. P. 23.
4. Руденко О.В. // Изв. вузов. Прикл. нелинейная динамика. 2018. Т. 26. № 3. С. 7.
5. Гурбатов С.Н., Вьюгин П.Н., Дерябин М.С. и др. // Акуст. журн. 2021. Т. 67. № 3. С. 235; Gurbatov S.N., Vyugin P.N., Deryabin M.S. et al. // Acoust. Phys. 2021. V. 67. No. 3. P. 237.
6. Rudenko O.V., Hedberg C.M. // Nonlinear Dynamics. 2017. V. 89. P. 1905–1913.
7. Руденко О.В. // ДАН. 2017. Т. 475. № 5. С. 503; Rudenko O.V. // Dokl. Math. V. 96. No. 1. P. 399.
8. Гусев В.А. // В кн.: Труды Всероссийской акустической конференции. СПб.: Политех-Пресс, 2020. С. 101.

Analytical solution for the diffracting intense gaussian beam in the framework of a modular nonlinearity model

V. A. Gusev^{a, *}, D. A. Zharkov^a

^aLomonosov Moscow State University, Moscow, 119991 Russia

*e-mail: vgusev@bk.ru

A model of modular nonlinearity has been developed for calculating the field of high-intensity bounded acoustic beams. The exact solution of this problem is obtained. The influence of diffraction and nonlinear effects on the time profile is demonstrated. It is shown that as the aperture decreases, a sequence of short positive high-amplitude pulses is formed, which was observed experimentally.