

微波铁氧体损耗的晶粒表层自旋波共振模型

韩志全

(中国西南应用磁学研究所, 绵阳 621000)

(1999 年 7 月 28 日收到)

考虑了晶粒表层中由杂质和应力引起的感生单轴各向异性场, 由进动方程解出了晶粒表层中的自旋波本征频率. 通过比较晶粒内部和表层的自旋波频谱上、下限, 说明了非共振有效线宽 ΔH_{eff} 来源于晶粒表层的自旋波共振激发. 提出多晶内禀磁化率 χ^i , 由晶粒内部的 χ^b 和晶粒表层的 χ^s 所组成, 得出了非共振 ΔH_{eff} 与 χ^s 及晶粒表层体积分数 V_s 成正比的关系式. 解释了 ΔH_{eff} 与晶粒尺寸及气孔率的关系. 阐明了场移的物理机制, 理论与实验相符.

PACC: 7630; 4110H

1 引 言

微波铁氧体多晶材料及器件在微波技术中有着广泛的应用. 器件在工作磁场下的插入损耗主要与材料的非共振有效线宽 ΔH_{eff} 有关. 人们对非共振 ΔH_{eff} 的起因已探索了 30 余年, 至今尚不甚明了^[1-8]. 我们知道, 铁磁弛豫理论^[9]可用来说明单晶的所有微波特性, 却说明不了多晶的微波损耗. 因此, 有必要对多晶与单晶的差异作一深入考察.

以往的研究注意到了晶粒无序排列所带来的磁晶各向异性场的起伏, 提出了铁磁共振线宽的各向异性致宽机制^[10]. Patton^[2,4]在此基础上成功地用双磁子散射理论定量地描述了共振区的 ΔH_{eff} , 却不能解释非共振区的 ΔH_{eff} ^[5].

事实上, 多晶与单晶的主要区别在于它具有晶粒边界和晶粒表面层. 晶界对宏观微波特性的影响是十分微弱的, 只起着相当于非常薄的片状非磁性另相的作用. 而晶粒表层则不同, 因为在靠近晶界的表层中, 往往会存在由吸附在晶界附近的杂质以及晶格失配应力等引起的感生各向异性表面场, 这就使得晶粒表层中的有效内场、共振模式及本征频率等显著区别于晶粒内部. 本文旨在用晶粒表层自旋波共振激发的观点, 说明非共振区 ΔH_{eff} 的来源, 将铁磁弛豫理论的适用范围扩展至多晶损耗.

2 晶粒表层中的自旋波本征频率

首先, 作如下假设: 外加恒定磁场 H 施于椭球样品的 z 轴并使样品磁化饱和; 对晶粒内部, 内场 $H_i = H - N_z M_s$, 其中 N_z 是样品 Z 方向退磁因子, M_s 是样品饱和磁化强度; 对一晶粒表层, 如图 1 所示, 其厚度为 L , 法线方向为 z' , 径向线度 $r \gg L$, 可近似视为无限磁性薄膜, 其磁化强度 M_s^* 在外表面很弱在内侧则为 M_s , 其上存在由吸附于晶界附近

近,仅把(4)式中的 M_s^s 换成 M_s 即可,下限仅比(3)式少一项 H^s [9]. 两者的关系如图 2 所示.

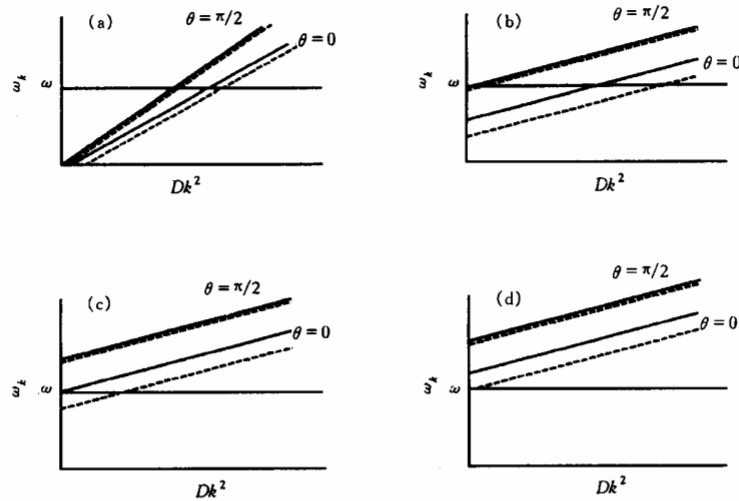


图 2 不同磁场下的晶粒表层自旋波簇(虚线)及晶粒内部自旋波簇(实线)示意图
(a) $H = H_1^s = N_z M_s (H_i = 0)$, (b) $H = H_1$, (c) $H = H_2$, (d) $H = H_2^s$

当在固定频率 ω 下改变磁场时,自旋波簇随磁场 H 的增加而上移(图 2). ω 进入晶粒表层自旋波簇顶的磁场 H_1^s 可很低(图 2(a)),如 $H = N_z M_s$, 即 $H_i = 0$, 因为 $k (= n\pi/L)$ 值可以很高. 对于晶粒内部, ω 进入自旋波簇顶的磁场 H_1 (图 2(b)), 由于内部缺少与高 k 模相应的磁不均匀性, 只能由 $k = 0$ 的上限式 $\omega/\gamma = [(H_1 - N_z M_s)(H_1 - N_z M_s + M_s)]^{1/2}$ 来确定, 故 $H_1^s \ll H_1$. ω 离开晶粒表层和内部自旋波簇底的磁场分别为 $H_2^s = \omega/\gamma + N_z M_s + |H^s|$ 和 $H_2 = \omega/\gamma + N_z M_s$, 见图 2(d)和(c), 即 $H_2^s = H_2 + |H^s|$. 显然, 在低场区($H_1^s < H < H_1$)和高场区($H_2 < H < H_2^s$), 对晶粒内部而言是非共振区; 对晶粒表层而言是共振区. 在 $H_1^s \rightarrow H_2^s$ 之间的任一磁场 H 下, 总能找到使(2)式中 $\omega_k^s = \omega$ 成立的多组 θ, k 值. 如图 2 所示过 ω 的水平线上位于自旋波簇之内线段的每一点都对应于一组 θ, k 解. 就某一与 H 成 θ 角的晶粒表层而言, 它的自旋波谱应是由 $n = 1, 2, 3, \dots$ 多峰位组成的分立谱线, 像薄膜的那样. 在多晶中, 由于晶粒表层的方位分布于 $\theta = 0 \rightarrow \pi/2$, 它们的自旋波谱线相互叠加的结果便构成了我们观测到的 $\Delta H_{\text{eff}}-H$ 关系中的连续“噪声”背景. 在低场区发生的是高 k 模共振激发, 在高场区发生的是低 k 模共振激发.

3 非共振区有效线宽 ΔH_{eff} 的物理意义

有效线宽的概念是 60 年代末为解释多晶内禀磁化率 $\chi_+^i(H_i)$ 的实验结果, 基于唯象假说——Landau-Lifshitz 运动方程中的阻尼系数 α 和旋磁比 γ 在多晶中均为内场 H_i 的

函数而提出来的^[1-3]. 在引入有效线宽 $\Delta H_{\text{eff}} = 2\alpha(H_i)\omega/\gamma(H_i)$ 后, 由进动方程给出的 χ_+^i 表示式 $\chi_+^i = M_s/(H_i - \omega/\gamma + i\alpha\omega/\gamma)$ 得出定义式^[2,3]

$$\Delta H_{\text{eff}}(H_i) = 2M_s \text{Im}(1/\chi_+^i), \quad (5)$$

式中 $\text{Im}(1/\chi_+^i)$ 表示内禀磁化率倒数的虚部.

当时认为, 非共振区 ΔH_{eff} 代表了一致进动的弛豫率 $\eta (= \alpha\omega)$ ^[2,3]. 在自旋波簇之外, 由于不存在与一致进动具有相同能量的简并态自旋波, 故弛豫率 $\eta = 0$. 因此, 非共振 ΔH_{eff} 应接近于单晶 ΔH , 并与晶粒尺寸无关. 但事实并非如此, 见图 3 和图 4.

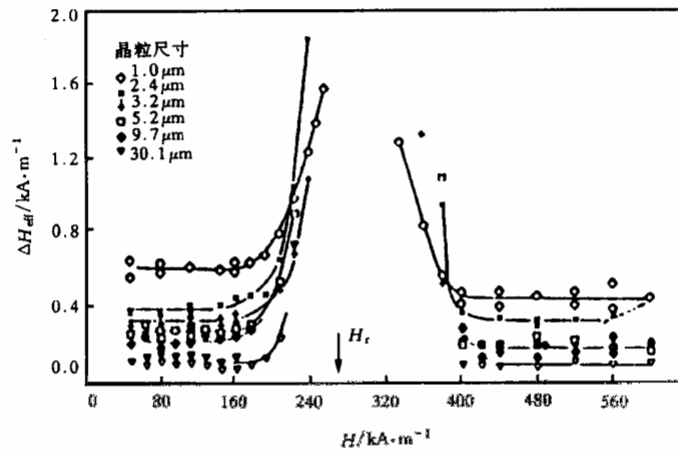


图 3 9.9 GHz 下不同晶粒尺寸 YIG 样品的 ΔH_{eff} 与 H_i 的关系^[4]

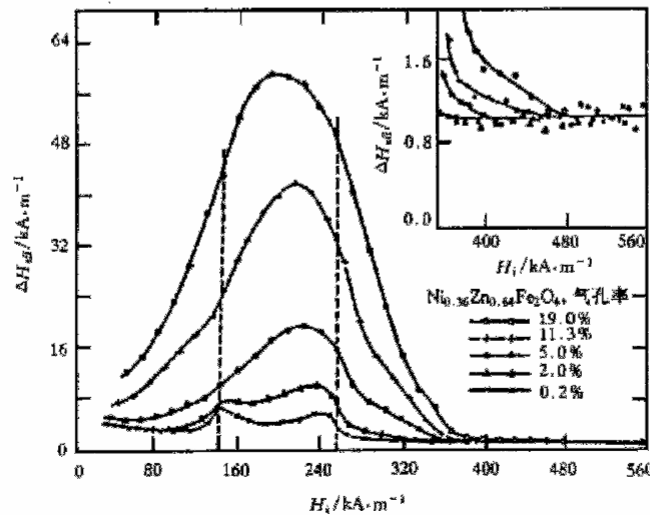


图 4 9 GHz 下不同气孔率的 NiZn 铁氧体样品 ($d = 1 \mu\text{m}$) 的 ΔH_{eff} 与 H_i 的关系^[5]

实际上,在多晶材料中,晶粒内部和表层分别有各自的有效内场、共振模式和本征频率.可以认为, χ_+^i 是这两大部分独立共振行为的总和.设晶粒内部和表层的内禀磁化率和体积分数分别为 χ_+^b , $V_b=1-V_s$, χ_+^s 和 V_s ,则多晶样品的 χ_+^i 可表示为

$$\chi_+^i = \chi_+^b (1 - V_s) + \chi_+^s V_s, \quad (6)$$

式中

$$\chi_+^i = \chi_+^{i'} - i\chi_+^{i''},$$

$$\chi_+^b = \chi_+^{b'} - i\chi_+^{b''},$$

$$\chi_+^s = \chi_+^{s'} - i\chi_+^{s''},$$

均为复数.在非共振区 $\eta \approx 0$, $\chi_+^{b''}$ 可以忽略, $\chi_+^{i''} = \chi_+^{s''} V_s f(H)$, 其中 $f(H)$ 为满足 $\omega = \omega_k^s$ 的在共振晶粒表层的比率系数,代入(5)式可得

$$\Delta H_{\text{eff}} = 2M_s \text{Im}(1/\chi_+^i) \cong 2M_s \chi_+^{s''} V_s f(H) / \chi_+^{i'2}. \quad (7)$$

(7)式表明,非共振 ΔH_{eff} 来源于晶粒表层中的自旋波共振损耗,并与晶粒表层的体积分数 V_s 及与 $\chi_+^{s''}$ 相关的晶粒表层自旋波弛豫率 η_k^s 成正比.

4 讨 论

4.1 晶粒表层的有效厚度 L_{eff}

根据薄膜铁磁共振的体不均匀(VI)模型, $M_s(z')$ 和 $H^s(z')$ 的不均匀性对共振行为的影响主要表现在发生共振($m^s \neq 0$)的有效厚度 L_{eff} 上^[11,13,14].其特点为: $\theta = 0$ 时, L_{eff} 比 L 小得多;随着 θ 的增加, L_{eff} 增大;至 $\theta \geq \theta_c$ (临界角)时, $L_{\text{eff}} = L$,体不均匀模消失^[14].实验中的低场 ΔH_{eff} 都大于高场 ΔH_{eff} ^[2-6]可能与此有关.因为在高场下发生的多是 $\theta \approx 0$ 的垂直共振, $L_{\text{eff}} \ll L$,而低场则不然.

4.2 ΔH_{eff} 与晶粒尺寸 d 和气孔率 p 的关系

已知,若任一线段 l 与晶界相交于 N 点,则在三维空间中晶界总面积 S 与晶粒总体积 V 之比为 $S/V = 2N/l$ ^[15].平均晶粒尺寸一般由平均截距法来测定,取 $d = l/N$.因此 $V_s = 2SL/V = 4L/d$,代入(7)式并计入与气孔相邻的晶粒表层体积分数 V_{sp} ,设 $V_{sp} \propto p^m$,可得 $\Delta H_{\text{eff}} \propto p^m/d^n$,若 L 与 d 无关,则 $n = 1$.这与实验规律^[2-6] $n = 1.0 - 0.5$, $m = 1$ 是相符的.

4.3 晶粒表层厚度 L 及体积分数 V_s

根据(4)式,取 $k = \pi/L$, $D = 10^{-39} \text{ Jm}^2$ ^[12], $H = N_s M_s$ (图3中的最低 H),由测量频率可以推算出YIG热压样品的 $L = 42 \text{ nm}$.由此可知,对晶粒尺寸 $d = 1, 3$ 和 $10 \mu\text{m}$ 的样品,其 V_s 分别为17%, 6%, 1.7%.可见,细晶粒样品的 V_s 已不容忽视,如 $d = 1 \mu\text{m}$ 时,

$V_s = 1/6$, χ_+^{sc} 的作用会相当显著;对大晶粒样品,如 $d = 30 \mu\text{m}$, $V_s = 0.6\%$, χ_+^{sc} 可忽略.实验结果正是这样, $d = 1$ 和 $30 \mu\text{m}$ YIG 的高场 ΔH_{eff} 分别是 0.48 kA/m (相当于共振区 ΔH_{eff} 的 $1/5$)和 0.024 kA/m (接近于单晶 ΔH)^[5].

4.4 感生单轴各向异性场 H^s

由图 4 可以看出,每个样品在高场一侧都存在着一个截止场 H^{cut} ,在这一磁场下 ΔH_{eff} 降至一最小值并随后保持不变.显然 H^{cut} 即为 H_2^s .由图 4 给出的 H^{cut} 及 H_2^s 的表达式可以算出, $p = 5\%$, 19% 的 NiZn 铁氧体的 $H^s = -142, -223 \text{ kA/m}$, 相应的 $K^s (H^s = 2K^s/M_s) \approx -2 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ 和 $-3 \times 10^4 \text{ J/m}^3$.由 YIG 在 35 GHz 下的 $H^{\text{cut}} \approx 1100 \text{ kA/m}$ ^[8], 可得出其 $H^s \approx -72 \text{ kA/m}$, $K^s \approx -6 \times 10^3 \text{ J/m}^3$.图 4 表明,样品的气孔率越高其 H^{cut} 越高,算出的 $|H^s|$ 值也越大,这进一步说明了 H^s 源于晶粒表面的不完整性并与制备工艺及显微结构密切相关.

4.5 场移 S

场移 S 是出于拟合实验数据 $\chi_+^i(H_i)$ 的需要,在引入 ΔH_{eff} 的同时基于 $\gamma(H_i)$ 的假说,令 $S(H_i) = \omega/\gamma(H_i) - \omega/\gamma(H_r)$ 而引入的,其中 H_r 为共振场.由进动方程得出 $\chi_+^i = M_s/(H_i - \omega/\gamma - S + i\Delta H_{\text{eff}}/2)$ ^[2,3].Vreben 曾对 $S(H_i)$ 作过详细报道,却难以解释^[3].

由(6)式及在非共振区 $\chi_+^v \approx M_s/(H_i - \omega/\gamma - S)$, $\chi_+^b \approx M_s/(H_i - \omega/\gamma)$, 不难得出

$$S(H_i) = (H_i - \omega/\gamma) V_s (\chi_+^{sc} - \chi_+^b) / \chi_+^v. \quad (8)$$

(8)式表明,场移 S 来源于内禀磁化率实部在晶粒表层中与内部的差,即 $\chi_+^{sc} - \chi_+^b$, 并与晶粒表层的体积分数 V_s 成正比.实验结果表明,在低场区, $S < 0$; 在高场区, $S > 0$; 在 $H_i = \omega/\gamma$ 及 $H \geq H^{\text{cut}}$ 处, $S = 0$, 以及 $|S| \propto |H_i - \omega/\gamma|$ 等等,均可由(8)式作出解释.由此看来,关于 $\gamma(H_i)$ 的假说是无须设立的.

5 结 论

1) 由于杂质和应力感生表面各向异性场 H^s 的存在,使得晶粒表层具有有别内部的有效内场、共振模式及本征频率 ω_k^s . 当 $\omega = \omega_k^s$ 时,在晶粒表层中将发生自旋波共振激发.

2) 非共振 ΔH_{eff} 源于晶粒表层中的自旋波共振损耗 χ_+^{sc} ; 场移 S 源于磁化率实部在晶粒表层与内部的差, $\chi_+^{sc} - \chi_+^b$.

3) 本模型可解释 ΔH_{eff} 与晶粒尺寸及气孔率的关系,还有场移的大小及符号.理论与实验相符.

[1] T. Kohane, E. Schiömann, *J. Appl. Phys.*, **39**(1968), 720.

[2] C. E. Patton, *Phys. Rev.*, **179**(1969), 352.

[3] Q. H. Vreben, *J. Appl. Phys.*, **40**(1969), 1849.

- [4] C. E. Patten, *IEEE Trans. Magn.*, **8**(1972), 433.
- [5] R. E. Kaelberer, C. E. Patton, *IEEE Trans. Magn.*, **13**(1977), 1230.
- [6] C. Borghese, R. Roveda, *J. Appl. Phys.*, **40**(1969), 4791.
- [7] Q. H. Vrehan, H. G. Beljers, J. G. M. DeLau, *Solid State Commu.*, **7**(1969), 117.
- [8] K. D. McKinstry, C. E. Patton, M. A. Witenauer, M. Sankararaman, J. Nyenhuis, F. J. Friedlaender, H. Sato, A. Schindler, *IEEE Trans. Magn.*, **25**(1989), 3482.
- [9] M. Sparks, *Ferromagnetic Relaxation Theory* (McGraw Hill, New York, 1964).
- [10] E. Schlomann, *J. Phys. Chem. Solides*, **6**(1958), 242.
- [11] M. Sparks, *Phys. Rev.*, **B1**(1970), 3831; 3869.
- [12] E. E. Anderson, *Phys. Rev.*, **A134**(1964), 1581.
- [13] A. M. Portis, *Appl. Phys. Lett.*, **2**(1963), 69.
- [14] Z. Q. Han, L. Pust, P. E. Wigen, P. DeGaspris, *J. Magn. Magn. Mater.*, **140—144**(1995), 733.
- [15] D. McLean, *Grain Boundaries in Metals* (Oxford University Press, 1957).

A MODEL OF MICROWAVE LOSS DUE TO SPIN WAVE RESONANCE IN GRAIN-SURFACE-LAYERS

HAN ZHI-QUAN

(Southwest Institute of Applied Magnetism of China, Mianyang 621000)

(Received 28 July 1999)

ABSTRACT

The spin wave manifold (spin wave eigenfrequencies) for grain-surface-layers is obtained from the precession equation in consideration of the existence of impurity-induced and strain-induced uniaxial anisotropy field H^z . The top and bottom of the manifold for grain-surface-layers at various applied fields H are illustrated in comparison with the manifold for the grain-interior-region. With the detailed calculation, it is revealed that the off-resonance effective linewidth ΔH_{eff} arises from the spin wave resonance excited in some grain-surface-layers and is proportional to the volume fraction of grain-surface-layers. Thus a lot of previous experiments on ΔH_{eff} vs grain size and porosity can be understood well, and the physical meaning of ΔH_{eff} is clarified.

PACC: 7630; 4110H