

АТОМНЫЕ СТРУКТУРЫ И МЕТОДЫ СТРУКТУРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

ATOMIC STRUCTURES AND STRUCTURAL STUDY METHODS

Известия высших учебных заведений. Материалы электронной техники. 2019. Т. 22, № 2. С. 135—142.
DOI: 10.17073/1609-3577-2019-2-135-142

УДК 621.315.592

Оценка степени кристаллографического упорядочения магнитоактивных ионов в $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ с помощью интенсивности рентгеновского пика (101)

© 2019 г. Е. Артюх^{1,§}, Г. Суханек²

¹ ГО «НПЦ НАН Беларуси по материаловедению», ул. П. Бровки, д. 19, Минск, 220072, Беларусь

² TU Dresden, Лаборатория твердотельной электроники, Дрезден, 01062, Германия

Аннотация. Ферромолибдат стронция ($\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$, SFMO), обладающий структурой двойного перовскита, является многообещающим кандидатом для использования в качестве основного материала в спинтронике. Однако на данный момент SFMO не нашел широкого применения из-за низкой воспроизводимости его магнитных свойств, вызванной, в том числе, их сильной зависимостью от степени упорядочения катионов Fe и Mo в подрешетках B' и B'' двойного перовскита $A_2B'B''O_6$. Рассмотрен экспресс-метод определения степени разупорядочения ферромолибдата стронция. Степень заселения подрешеток катионами Fe и Mo определена как для стехиометрического, так и для нестехиометрического $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ с 5%-ным избытком Fe и Mo соответственно. Рассчитано соотношение интенсивности пика сверхструктурного упорядочения (101) к наиболее интенсивному пику (112 + 200). Проведена подгонка расчетных кривых под известное для аналогичных случаев аналитическое выражение. Результаты расчетов предложенным авторами методом совпадают с результатами обработки экспериментальных данных методом Ритвельда в пределах $\pm 25\%$, что позволяет использовать этот метод в качестве альтернативы методу Ритвельда в том случае, когда время выдержки для рентгеноструктурного анализа установлено недостаточно большим. Обсуждено влияние таких факторов, как приборное уширение дифракционных пиков, уширение пиков вследствие уменьшения размера кристаллитов, изменение параметров решетки тонких пленок за счет их несоответствия с подложкой и изменение параметров решетки за счет появления кислородных вакансий на соотношение интенсивности пиков $I(101)/I(112 + 200)$. Актуальность метода состоит в том, что он позволяет оценить степень сверхструктурного упорядочения $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ не требуя больших затрат времени съемки и обработки данных дифрактограмм методом Ритвельда, что может быть полезно в случае, когда предстоит обработать большое количество результатов измерений.

Ключевые слова: ферромолибдат стронция, степень упорядоченности атомов, рентгеноструктурный анализ

Введение

Ферромолибдат стронция $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ (SFMO) обладающий структурой двойного перовскита, — это многообещающий кандидат для использования в качестве основного материала в спинтронике. Этот материал является полуметаллом с практически 100 % спиновой поляризацией электронов про-

димости [1], имеет высокое значение температуры Кюри ($T_c \approx 415$ K), что позволяет использовать SFMO при комнатной температуре (ферримагнетики должны работать в их упорядоченном магнитном состоянии ниже температуры Кюри). Кроме того, SFMO обладает значительным магнитосопротивлением в слабых магнитных полях [2]. При этом магнитосопротивление в слабых полях практически отсутствует в монокристаллах [3], а в высоко упорядоченных керамиках достигает 6,5 % при комнатной температуре в магнитном поле с индукцией 0,3 Тл [4]. Тем не менее, на данный момент в спинтронике

Евгений Артюх^{1,§} — sirfranzferdinand@yandex.ru; Д-р Гуннар Суханек² — Gunnar.Suchaneck@mailbox.tu-dresden.de

§ Автор для переписки.

широкого применения SFMO не нашел. Причиной этого является низкая воспроизводимость его магнитных свойств, вызванная, в том числе, их сильной зависимостью от степени упорядочения катионов Fe и Mo в подрешетках B' и B'' двойного перовскита $A_2B'B''O_6$ [5].

SFMO обладает тетрагональной структурой с пространственной группой $I4/m$, однако, некоторые авторы рассматривают также пространственную группу $I4/mmm$ с пониженной симметрией (см. например работы [6—9]). Идеальную структуру решетки Sr_2FeMoO_6 можно рассматривать как модифицированную структуру перовскита, в которой кислородные октаэдры FeO_6 и MoO_6 образуют две взаимно проникающие объемно-центрированные подрешетки с кубической или тетрагональной симметрией, которые сдвинуты друг относительно друга на половину диагонали грани основания элементарной ячейки. Катионы A находятся в кубооктаэдрических полостях, образованных октаэдрами FeO_6 и MoO_6 (рис. 1).

В стехиометрическом SFMO параметр порядка S (степень упорядочения) связан с долей ионов на неправильной подрешетке, так называемым антиструктурным разупорядочением, как [10]

$$S = 1 - 2ASD. \quad (1)$$

Антиструктурное разупорядочение (*antisite disorder, ASD*) образуется, когда ион Fe из подрешетки Fe занимает место иона Mo в подрешетке Mo — Fe_{Mo} , (и наоборот, — Mo_{Fe}). Оно характеризуется появлением пар дефектов Fe_{Mo} и Mo_{Fe} . При этом значение ASD варьируется от 0 (соответствует полному порядку) до 0,5 (случайное размещение ионов Fe и Mo по подрешеткам). Кроме того, существуют еще одиночные антиструктурные дефекты, образующиеся в нестехиометрических образцах, когда, например, избыточные ионы Fe занимают место в подрешетке Mo, образуя дефект Fe_{Mo} [11].

В идеальной решетке SFMO кристаллографические плоскости (101) являются плоскостями или Fe, или Mo, и в рентгеновском спектре возникает пик сверхструктурного упорядочения (101) [6]. С появлением ASD интенсивность пика сверхструктурного упорядочения (101) падает. В неупорядоченной структуре, в которой положения ионов Fe и Mo распределены случайным образом, пик сверхструктурного упорядочения (101) угасает полностью. Отметим, что пик (103) также является пиком сверхструктурного упорядочения, интенсивность которого, однако, даже в случае полного порядка, значительно меньше интенсивности пика (101) [12].

С другой стороны, в кристаллической ячейке SFMO можно выбрать плоскости, интенсивности соответствующих дифракционных пиков которых не зависят от степени упорядочения катионов в подре-

шетках, и с ними можно сравнивать интенсивность пика сверхструктурного упорядочения (101) для определения степени антиструктурной дефектности образца. В качестве такого калибровочного пика в литературе рассматривается пик, состоящий из двух пиков: (112) и (200) [6], а также пик (404) [14]. Дифракционный пик (112) является для SFMO самым интенсивным, и, следовательно, его интенсивность определяется с наименьшей погрешностью. Однако он частично перекрывается с пиком (200), что следует учитывать при анализе.

Впервые соотношение рентгеновских пиков $I(101)/[I(112) + I(200)]$ для оценки ASD в подрешетках Fe и Mo использовалось в работе [6]. Позже это соотношение рассматривалось в работах [7, 15], при этом предполагалось, что соотношение $I(101)/[I(112) + I(200)]$ линейно уменьшается с ростом степени разупорядочения [7]. Впоследствии соотношение $I(101)/[I(112) + I(200)]$ использовали как оценочную меру степени разупорядоченности в керамических образцах SFMO [17—20].

В работе [14] антиструктурное разупорядочение определяли построением двумерных карт обратного пространства для пиков (101) и (404). Соотношение интегральных интенсивностей рентгеновских

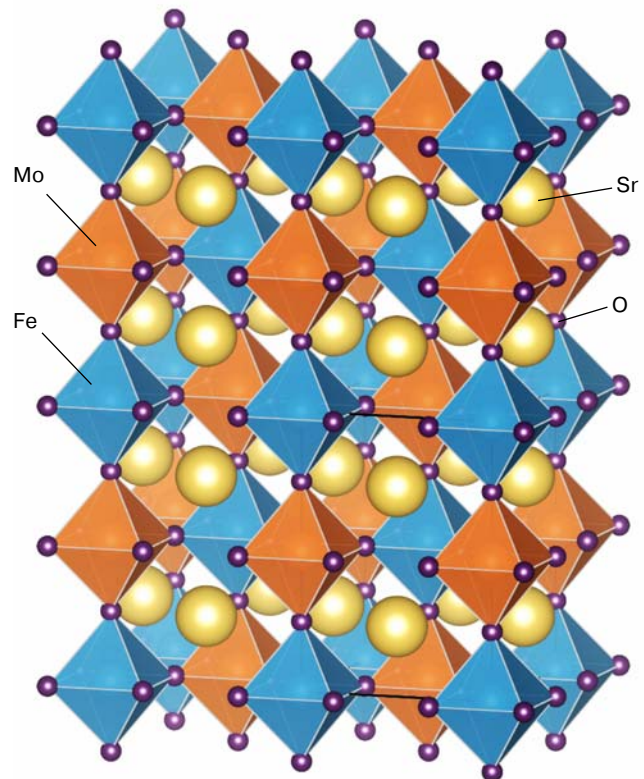


Рис. 1. Идеальная кристаллическая структура SFMO (желтым цветом показаны ионы Sr, синим — Fe, оранжевым — Mo, фиолетовым — O). Изображение получено с использованием программы трехмерной визуализации для структурных моделей VESTA [13]

Fig. 1. The ideal crystal structure of SFMO (Sr ions are shown in yellow, Fe — blue, Mo — orange, and O — purple). The image was obtained using the three-dimensional visualization program for structural models VESTA [13]

пиков $I(101)/I(404)$ рассматривали как меру разупорядочения в подрешетках, используя следующее выражение:

$$ASD = b - \sqrt{\frac{I(101)}{aI(404)}}, \quad (2)$$

где $a = 0,5583 \pm 0,0005$ и $b = 0,5225 \pm 0,0002$ — константы, полученные путем моделирования рентгенограмм [14].

В случае соотношения $I(101)/[I(112) + I(200)]$ теоретические кривые, по которым можно определить степень разупорядочения без предварительной обработки рентгенограмм методом Ритвельда, отсутствуют.

Цель работы — проанализировать возможность использования экспресс-метода определения степени антиструктурного разупорядочивания по соотношению пиков $I(101)/[I(112) + I(200)]$ для оптимизации времени рентгеновской съемки образцов SFMO.

Теоретический анализ

В дальнейшем будем рассматривать интенсивность I рентгеновского рефлекса, равной высоте соответствующего пика, так как эта величина надежно определяется, даже при достаточно малых временах съемки. Например, время экспозиции для достоверного полнопрофильного анализа рентгеновских дифрактограмм больше чем на порядок превышает время экспозиции для фазового анализа [21], что делает съемку для метода Ритвельда затратной по времени.

Расчеты проводились с помощью программных пакетов VESTA [13] и RIETAN-FP-VENUS Package [22]. Исходные данные для моделирования рентгенограммы SFMO (табл. 1) взяты из работы [8]. В каче-

стве основной структуры рассмотрена ячейка SFMO с пространственной группой $I4/m$ и с параметрами решетки $a = 0,557$ нм, $c = 0,790$ нм. Рассматривалось излучение $CuK\alpha$ с длиной волны $0,154059$ нм.

В SFMO, синтезированном в условиях дефицита кислорода, главными точечными дефектами являются вакансии Sr и антиструктурные дефекты [23]. Поэтому, для простоты, в дальнейшем рассмотрим подрешетки Fe и Mo, полностью занятые ионами Fe или Mo.

Степень упорядочения для стехиометрического SFMO равна

$$S = Fe_{Fe} - Fe_{Mo} = Mo_{Mo} + Mo_{Fe}. \quad (3)$$

В этом случае, степень заселения подрешеток катионами Fe и Mo определяется следующими формулами:

$$Fe_{Fe} = 1 - \left(\frac{100 - ASD}{100 \%} \right); \quad Fe_{Mo} = 1 - Fe_{Fe}; \quad (4)$$

$$Mo_{Mo} = 1 - \left(\frac{100 - ASD}{100 \%} \right); \quad Mo_{Fe} = 1 - Mo_{Mo}. \quad (5)$$

Для нестехиометрического $Sr_2Fe_{1-x}Mo_{1+x}O_{6-\delta}$ степени заселения подрешеток катионами Fe и Mo определяются формулами [24]

$$Fe_{Fe} = (1 - x) \left(\frac{100 - ASD}{100 \%} \right);$$

$$Fe_{Mo} = (1 - x) - Fe_{Fe}; \quad (6)$$

$$Mo_{Mo} = x + (1 - x) \left(\frac{100 - ASD}{100 \%} \right);$$

$$Mo_{Fe} = 1 + x - Mo_{Mo}; \quad (7)$$

Таблица 1

Координаты ионов в кристаллической решетке SFMO [8] [Ion coordinates in the SFMO crystal lattice]

Ион	Координата		
	X	Y	Z
Sr	0,5	0	0,25
Fe _{Fe}	0	0	0
Fe _{Mo}	0	0	0,5
Mo _{Mo}	0	0	0,5
Mo _{Fe}	0	0	0
O1	0	0	0,25
O2	0,25	0,25	0

Обозначения: Fe_{Fe}, Fe_{Mo} — координаты ионов железа в подрешетках Fe и Mo соответственно; Mo_{Mo}, Mo_{Fe} — координаты ионов молибдена в подрешетках Mo и Fe.

и соответственно для $Sr_2Fe_{1+x}Mo_{1-x}O_{6-\delta}$

$$Fe_{Fe} = x + (1 - x) \left(\frac{100 - ASD}{100 \%} \right);$$

$$Fe_{Mo} = 1 + x - Fe_{Fe}; \quad (8)$$

$$Mo_{Mo} = (1 - x) \left(\frac{100 - ASD}{100 \%} \right);$$

$$Mo_{Fe} = (1 - x) - Mo_{Mo}. \quad (9)$$

Для определения зависимости концентрации ASD от соотношения пиков $I(101)/[I(112) + I(200)]$ использовались данные по заселенностям подрешеток из табл. 2—4.

Результаты и их обсуждение

Сравнение расчетных зависимостей ASD от соотношения $I(101)/[I(112) + I(200)]$ с экспериментальными данными представлено на рис. 2. При этом,

Таблица 2

Используемые в расчетах данные по концентрации ионов в подрешетках для SFMO
[Used in the calculations data on the concentration of ions in the sublattices for SFMO]

S, %	ASD, %	Fe _{Fe}	Fe _{Mo}	Mo _{Mo}	Mo _{Fe}
100	0	1	0	1	0
90	5	0,95	0,05	0,95	0,05
80	10	0,9	0,1	0,9	0,1
70	15	0,85	0,15	0,85	0,15
60	20	0,8	0,2	0,8	0,2
50	25	0,75	0,25	0,75	0,25
40	30	0,7	0,3	0,7	0,3
30	35	0,65	0,35	0,65	0,35
20	40	0,6	0,4	0,6	0,4
10	45	0,55	0,45	0,55	0,45
0	50	0,5	0,5	0,5	0,5

кроме данных для спеченных при высоких температурах, т.е. крупнозернистых, керамик [6, 16, 18], учитывались также единичные данные из работ [9, 25—32].

Для моделируемого кристалла SFMO с параметрами, описанными выше ($I4/m$, $a = 0,557$ нм, $c = 0,790$ нм), и для $\text{CuK}\alpha$ -излучения пик (101) приходится на $19,484^\circ$, пик (112) — на $32,066^\circ$, а максимум пика (200) находится правее максимума пика (112) на $0,047^\circ$. Учет одного только пика (112) дает завышенные значения ASD по сравнению с литературными данными. Из-за близости пиков (112) и (200) можно рассматривать сумму интенсивностей пиков (112) + (200), которая составляет 149,8 % от интенсивности пика (112). Интенсивность суммарного пика зависит от ряда факторов:

- приборное уширение дифракционных пиков;
- уширение пиков вследствие уменьшения размера кристаллитов;

- изменение параметров решетки тонких пленок за счет их несоответствия с подложкой;
- изменение параметров решетки за счет появления кислородных вакансий, и др.

Рассмотрим эти параметры более подробно. Приборное уширение дифракционных пиков экспериментально определяется с помощью эталона NIST-Si-standard 640d [33]. Например, для рентгеновского спектрометра Bruker D8 Discover в геометрии Брэгга-Брентано приборное расширение рентгеновских пиков при малых углах дифракции составляет примерно $0,17^\circ$. В таком случае интенсивность суммарного пика (112) + (200) увеличивается до 146,5 % пика (112).

Рассмотрим уширение пиков вследствие уменьшения размера кристаллитов, используя формулу Шеррера для полной ширины дифракционного пика на половине его высоты

$$\text{FWHM} = \frac{K\lambda}{d \cos\theta}, \quad (10)$$

где d — средний размер кристаллитов; K — безразмерный коэффициент порядка 0,9 (для сферических частиц); λ — длина волны рентгеновского излучения; θ — угол дифракции. Рассчитанное для сферических частиц диаметром 100 нм уширение для пиков (112) и (200) составляет $0,083^\circ$. Это дополнительно увеличивает интенсивность суммарного пика (112) + (200) до 147,9 % от пика (112). Малое несоответствие параметров решеток SFMO и подложки, на

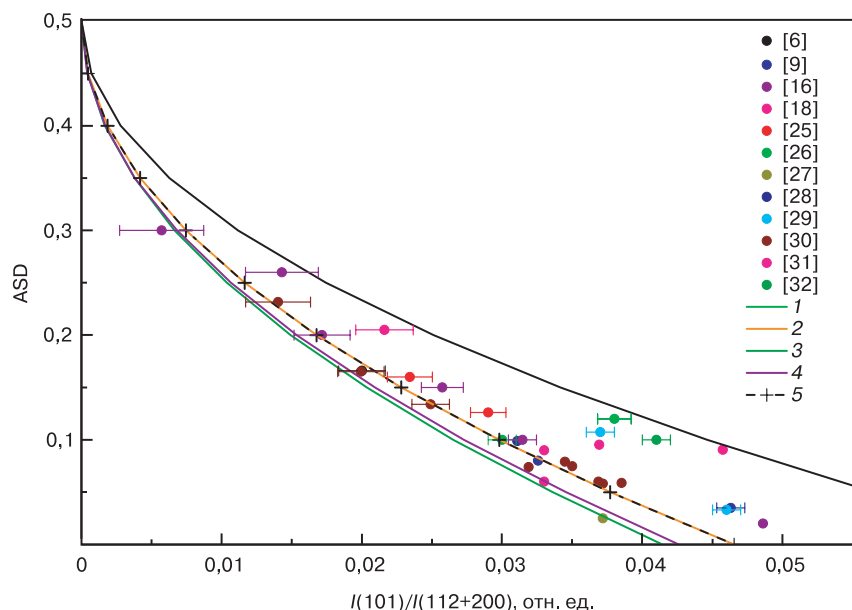


Рис. 2. Сравнение расчетных зависимостей ASD (1—5) от относительной интенсивности пика (101) с литературными данными ([6], [9], [16], [18], [25—32]), полученными анализом рентгеновских дифрактограмм методом Ритвелда: 1 — расчет без учета пика (200); 2 — расчет с учетом суммы интенсивностей пиков (112) и (200); 3 — расчет с учетом суммы интенсивностей пиков (112) и (200) для $\text{Sr}_2\text{Fe}_{0,95}\text{Mo}_{1,05}\text{O}_{6-\delta}$; 4 — расчет с учетом суммы интенсивностей пиков (112) и (200) для $\text{Sr}_2\text{Fe}_{1,05}\text{Mo}_{0,95}\text{O}_{6-\delta}$; 5 — кривая, рассчитанная по формуле (11)

Fig. 2. Comparison of the calculated dependences of ASD (1—5) on the relative intensity of the peak (101) with published data ([6], [9], [16], [18], [25—32]) obtained by the analysis of X-ray diffraction patterns by the method Rietveld: (1) calculation without peak (200); (2) calculation taking into account the sum of the intensities of the peaks (112) and (200), (3) calculation taking into account the sum of the intensities of the peaks (112) and (200) for $\text{Sr}_2\text{Fe}_{0,95}\text{Mo}_{1,05}\text{O}_{6-\delta}$, (4) calculation taking into account the sum of the intensities of the peaks (112) and (200) for $\text{Sr}_2\text{Fe}_{1,05}\text{Mo}_{0,95}\text{O}_{6-\delta}$, (5) curve calculated by the formula (11)

Таблица 3

Используемые в расчетах данные по концентрации ионов в подрешетках для $Sr_2Fe_{0,95}Mo_{1,05}O_{6-\delta}$ [The data on the concentration of ions in the sublattices used in the calculations for $Sr_2Fe_{0,95}Mo_{1,05}O_{6-\delta}$]

S, %	ASD, %	Fe _{Fe}	Fe _{Mo}	Mo _{Mo}	Mo _{Fe}
100	0	0,95	0	1	0,05
90	5	0,9025	0,0475	0,9525	0,0975
80	10	0,855	0,095	0,905	0,145
70	15	0,8075	0,1425	0,8575	0,1925
60	20	0,76	0,19	0,81	0,24
50	25	0,7125	0,2375	0,7625	0,2875
40	30	0,665	0,285	0,715	0,335
30	35	0,6175	0,3325	0,6675	0,3825
20	40	0,57	0,38	0,62	0,43
10	45	0,5225	0,4275	0,5725	0,4775
0	50	0,475	0,475	0,525	0,525

Таблица 4

Используемые в расчетах данные по концентрации ионов в подрешетках для $Sr_2Fe_{1,05}Mo_{0,95}O_{6-\delta}$ [The data on the concentration of ions in the sublattices used in the calculations for $Sr_2Fe_{1,05}Mo_{0,95}O_{6-\delta}$]

S, %	ASD, %	Fe _{Fe}	Fe _{Mo}	Mo _{Mo}	Mo _{Fe}
100	0	1	0,05	0,95	0
90	5	0,9525	0,0975	0,9025	0,0475
80	10	0,905	0,145	0,855	0,095
70	15	0,8575	0,1925	0,8075	0,1425
60	20	0,81	0,24	0,76	0,19
50	25	0,7625	0,2875	0,7125	0,2375
40	30	0,715	0,335	0,665	0,285
30	35	0,6675	0,3825	0,6175	0,3325
20	40	0,62	0,43	0,57	0,38
10	45	0,5725	0,4775	0,5225	0,4275
0	50	0,525	0,525	0,475	0,475

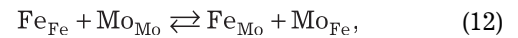
которой происходит эпитаксиальный рост пленки, слабо изменяет интенсивности пиков сверхструктуры SFMO. Это мы подтвердили, рассмотрев дополнительно комбинации $a = 0,557$ нм и $c = 0,804$ нм, $a = 0,562$ нм и $c = 0,792$ нм, $a = 0,795$ нм, $c = 0,560$ нм, моделирующие подложки SrTiO₃, MgO и LaAlO₃ со-

ответственно [34]. Полученные кривые практически не отличаются от исходной (рассчитанной для параметров решетки $a = 0,557$ нм, $c = 0,790$ нм). Изменение параметров решетки за счет появления кислородных вакансий не превышает рассмотренные случаи несоответствия параметров решеток пленки SFMO и подложки [15, 35, 36], и поэтому отдельно не рассматривалось.

Расчетные кривые по форме повторяют уравнение (2), но со сжатием данных по оси X. Это обусловлено меньшей интенсивностью пика (404) по сравнению с пиком (112). Поэтому провели подгонку рассчитанной кривой по формуле (2) в виде

$$ASD = A - B \sqrt{\frac{I(101)}{[I(112) + I(200)]}} \quad (11)$$

Параметр A определяется граничным условием: в разупорядоченном SFMO, т. е. при $I(101)/[I(112) + I(200)] \rightarrow 0$, A принимает значение 0,5. Значение параметра B составляет 2,318. Кривая, рассчитанная по формуле (11), изображена на рис. 2. Поскольку уменьшение интенсивности пика (101) является мерой увеличения концентрации антиструктурных пар Fe_{Mo} и Mo_{Fe}, то из равновесия



с константой

$$k = [Fe_{Mo}][Mo_{Fe}] = [Fe_{Mo}]^2, \quad (13)$$

получаем концентрацию антиструктурных пар Fe_{Mo} и Mo_{Fe} в виде $k^{1/2}$ и, таким образом, уменьшение интенсивности пика (101) как квадратный корень от концентрации антиструктурных пар. Уравнение (11) позволяет быстро оценить ASD по интенсивностям пика (101) и суммы пиков (112) + (200).

Для нестехиометрического $Sr_2Fe_{1+x}Mo_{1-x}O_{6-\delta}$ ASD рассчитывается как [24]

$$ASD = \frac{S_{max} - S}{2}, \quad (14)$$

где S — параметр порядка, определяемый по формуле (3); S_{max} — максимальная степень сверхструктурного упорядочения, которая, например, для SFMO с избытком Mo, определяется по формуле

$$S_{max} = Fe_{Fe} - Fe_{Mo} = 2 - (Mo_{Mo} + Mo_{Fe}) < 1. \quad (15)$$

Интенсивность пиков (112) и (200) зависит от инструментальных погрешностей, размеров зерен и их кристалличности, неправильной подготовки исследуемых образцов (измельчение образца, подготовка держателя для образца) и т. д. Тем не менее, метод определения степени сверхструктурного упорядочения по соотношению $I(101)/[I(112) + I(200)]$ можно

считать достаточно простым методом оценки степени сверхструктурного упорядочения SFMO для составов с близким к единице соотношением Fe/Mo, поскольку мы сравниваем соотношение интенсивностей пиков и в значительной степени учитываем влияние указанных выше факторов.

Заклучение

Предложен экспресс-метод определения степени ASD по соотношению пиков $I(101)/[I(112) + I(200)]$ с использованием формулы (11). Метод позволяет значительно сэкономить время рентгеновских съемок и дает достоверные результаты для близких к стехиометрии образцов SFMO в которых $Fe \approx Mo$.

Библиографический список

- Serrate D., De Teresa J. M., Ibarra M. R. Double perovskites with ferromagnetism above room temperature // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2006. V. 19, Iss. 2. P. 023201 (86pp). DOI: 10.1088/0953-8984/19/2/023201
- Kobayashi K.-I., Kimura T., Sawada H., Terakura K., Tokura Y. Room-temperature magnetoresistance in an oxide material with an ordered double-perovskite structure // *Nature*. 1998. V. 395. P. 677—680. DOI: 10.1038/27167
- Tomioka Y., Okuda T., Okimoto Y., Kumai R., Kobayashi K.-I., Tokura Y. Magnetic and electronic properties of a single crystal of ordered double perovskite Sr_2FeMoO_6 // *Phys. Rev. B*. 2000. V. 61, Iss. 1. P. 422—427. DOI: 10.1103/PhysRevB.61.422
- Retuerto M., Alonso J. A., Martínez-Lope M. J., Martínez J. L., García-Hernández M. Record saturation magnetization, Curie temperature, and magnetoresistance in double perovskite synthesized by wet-chemistry techniques // *Appl. Phys. Lett.*, 2004. V. 85, Iss. 2. P. 266—268. DOI: 10.1063/1.1772857
- Suchanek G., Kalanda N., Artsiukh E., Gerlach G. Challenges in Sr_2FeMoO_6 thin film deposition // *Phys. Status Solidi (b)*. 2019. V. 257, Iss. 3. P. 1900312. DOI: 10.1002/pssb.201900312
- Balcells Ll., Navarro J., Bibes M., Roig A., Martínez B., Fontcuberta J. Cationic ordering control of magnetization in Sr_2FeMoO_6 double perovskite // *Appl. Phys. Lett.* 2001. V. 78. P. 781—783. DOI: 10.1063/1.1346624
- Harnagea L., Berthet P. The effect of strontium non-stoichiometry on the physical properties of double perovskite Sr_2FeMoO_6 // *J. Solid State Chem.* 2015. V. 222. P. 115—122. DOI: 10.1016/j.jssc.2014.11.017
- Fix T. Couches minces de Sr_2FeMoO_6 élaborées par ablation laser pour des jonctions tunnel magnétiques. Diss. Dr. Sci. (Phys.-Math.), Strasbourg, 2006.
- Park B. J., Han H., Kim J., Kim Y. J., Kim C. S., Lee B. W. Correlation between anti-site disorder and magnetic properties in ordered perovskite Sr_2FeMoO_6 // *J. Magnetism and Magnetic Materials*. 2004. V. 272, Iss. 3. P. 1851—1852. DOI: 10.1016/j.jmmm.2003.12.429
- Moritomo Y., Shimamoto N., Xu S., Machida A., Nishibori E., Takata M., Sakata M., Nakamura A. Effects of B-site disorder in Sr_2FeMoO_6 with double perovskite structure // *Jpn. J. Appl. Phys.* 2001. V. 40, Pt 2, N 7A. P. L672—L674. DOI: 10.1143/JJAP.40.L672
- Mishra R., Restrepo O. D., Woodward P. M., Windl W. First-principles study of defective and nonstoichiometric Sr_2FeMoO_6 // *Chemistry of Materials*. 2010. V. 22, Iss. 22. P. 6092—6102. DOI: 10.1021/cm101587e
- Kalanda M., Suchanek G., Saad A., Demyanov S., Gerlach G. Influence of oxygen stoichiometry and cation ordering on magnetoresistive properties of $Sr_2FeMoO_{6\pm\delta}$ // *Materials Science Forum*. 2010. V. 636—637. P. 338—343. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.636-637.338
- Momma K., Izumi F. VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data // *J. Appl. Cryst.* 2011. V. 44. P. 1272—1276. DOI: 10.1107/S0021889811038970
- Saloaro M., Deniz H., Huhtinen H., Palonen H., Majumdar S., Paturi P. The predominance of substrate induced defects in magnetic properties of Sr_2FeMoO_6 thin films // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2015. V. 27. P. 386001 (11pp). DOI: 10.1088/0953-8984/27/38/386001
- Kirchheisen R., Töpfer J. Nonstoichiometry, Point defects and magnetic properties in $Sr_2FeMoO_{6-\delta}$ double perovskites // *J. Solid State Chem.* 2015. V. 185. P. 76—81. DOI: 10.1016/j.jssc.2011.10.043
- Wang J.-F., Li Z., Xu X.-J., Gu Z.-B., Yuan G.-L., Zhang S.-T. The competitive and combining effects of grain boundary and Fe/Mo antisite defects on the low-field magnetoresistance in Sr_2FeMoO_6 // *J. American Ceramic Society*. 2014. V. 97. P. 1137—1142. DOI: 10.1111/jace.12749
- Kuepper K., Balasz I., Hesse H., Winiarski A., Prince K. C., Matteucci M., Wett D., Szargan R., Burzo E., Neumann M. Electronic and magnetic properties of highly ordered Sr_2FeMoO_6 // *Phys. Status Solidi (a)*. 2004. V. 201, Iss. 15. P. 3252—3256. DOI: 10.1002/pssa.200405432
- Sui Y., Wang X. J., Qian Z. N., Cheng J. G., Liu Z. G., Miao J. P., Li Y., Su W. H., Ong C. K. Enhancement of low-field magnetoresistance in polycrystalline Sr_2FeMoO_6 with doping // *Appl. Phys. Lett.* 2004. V. 85, Iss. 2. P. 269—271. DOI: 10.1063/1.1769581
- Sarma D. D., Ray S., Tanaka K., Kobayashi A., Fujimori A., Sanyal P., Krishnamurthy H. R., Dasgupta C. Intergranular magnetoresistance in Sr_2FeMoO_6 from a magnetic tunnel barrier mechanism across grain boundaries // *Phys. Rev. Lett.* 2007. V. 98. P. 157205 (4pp). DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.157205
- Hayes J. R., Grosvenor A. P. An investigation of the Fe and Mo oxidation states in $Sr_2Fe_{2-x}Mo_xO_6$ ($0.25 \leq x \leq 1.0$) double perovskites by X-ray absorption spectroscopy // *J. Alloys and Compounds*. 2012. V. 537. P. 323—331. DOI: 10.1016/j.jallcom.2012.05.056
- Spieß L., Teichert G., Schwarzer R., Behnken H., Genzel C. *Moderne Röntgenbeugung: Röntgendiffraktometrie für Materialwissenschaftler, Physiker und Chemiker*. Berlin; Heidelberg; Wiesbaden: Springer Spektrum, 2019. 624 p. DOI: 10.1007/978-3-8348-8232-5
- Izumi F., Momma K. Three-dimensional visualization in powder diffraction // *Solid State Phenomena*. 2007. V. 130. P. 15—20. DOI: 10.4028/www.scientific.net/SSP.130.15
- Adeagbo W. A., Hoffmann M., Ernst A., Hergert W., Saloaro M., Paturi P., Kokko K. Tuning the probability of defect formation via substrate strains in Sr_2FeMoO_6 films // *Phys. Rev. Mater.* 2018. V. 2, Iss. 8. P. 083604 (9pp). DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.083604
- Liu G. Y., Rao G. H., Feng X. M., Yang H. F., Ouyang Z. W., Liu W. F., Liang J. K. Atomic ordering and magnetic properties of non-stoichiometric double-perovskite $Sr_2Fe_xMo_{2-x}O_6$ // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2003. V. 15, Iss. 12. P. 2053—2060. DOI: 10.1088/0953-8984/15/12/322
- Sánchez D., Alonso J. A., García-Hernández M., Martínez-Lope M. J., Martínez J. L., Møllergård A. Origin of neutron magnetic scattering in antisite-disordered Sr_2FeMoO_6 double perovskites // *Phys. Rev. B*. 2002. V. 65, Iss. 10. P. 104426 (8pp). DOI: 10.1103/PhysRevB.65.104426
- Navarro J., Frontera C., Rubi D., Mestres N., Fontcuberta J. Aging of Sr_2FeMoO_6 and related oxides // *Materials Research Bulletin*. 2003. V. 38, Iss. 9—10. P. 1477—1486. DOI: 10.1016/S0025-5408(03)00171-5
- Huang Y. H., Karppinen M., Yamauchi H., Goodenough J. B. Systematic studies on effects of cationic ordering on structural and magnetic properties in Sr_2FeMoO_6 // *Phys. Rev. B*. 2006. V. 73, Iss. 10. P. 104408 (5pp). DOI: 10.1103/PhysRevB.73.104408
- Hu Y. C., Ge J. J., Ji Q., Lv B., Wu X. S., Cheng G. F. Synthesis and crystal structure of double-perovskite compound Sr_2FeMoO_6 // *Powder Diffraction*. 2010. V. 25. P. S17—S21. DOI: 10.1154/1.3478711
- Zhang Q., Xu Z. F., Wang L. F., Gao S. H., Yuan S. J. Structural and electromagnetic properties driven by oxygen vacancy in $Sr_2FeMoO_{6-\delta}$ double perovskite // *J. Alloys and Compounds*. 2015. V. 649. P. 1151—1155. DOI: 10.1016/j.jallcom.2015.07.211
- Lü M., Li J., Hao X., Yang Z., Zhou D., Meng J. Hole doping double perovskites $Sr_2FeMo_{1-x}O_6$ ($x = 0, 0.03, 0.04, 0.06$) and their Mössbauer, crystal structure and magnetic properties // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2008. V. 20, Iss. 17. P. 175213 (9pp). DOI: 10.1088/0953-8984/20/17/175213
- Kumar N., Gaur A., Kotnala R. K. Stable Fe deficient $Sr_2Fe_{1-\delta}MoO_6$ ($0.0 < \delta < 0.10$) compound // *J. Alloys and Compounds*. 2014. V. 601. P. 245—250. DOI: 10.1016/j.jallcom.2014.02.173
- Wang J.-F., Zhang J., Hu B., Gu Z.-B., Zhang S.-T. Tunable low-field magnetoresistance in Sr_2FeMoO_6 ceramics using organic glycerin to modify grain boundaries and Fe/Mo ordering // *J. Phys. D:*

Appl. Phys. 2014. V. 47, Iss. 44. P. 445003 (5pp). DOI: 10.1088/0022-3727/47/44/445003

33. Black D. R., Windover D., Henins A., Gil D., Filliben J., Cline J. P. Certification of NIST standard reference material 640d // *Power Diffraction*. 2010. V. 25, Iss. 2. P. 187—190. DOI: 10.1154/1.3409482

34. Jalili H., Heinig N. F., Leung K. T. Growth evolution of laser-ablated $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ nanostructured films: Effects of substrate-induced strain on the surface morphology and film quality // *J. Chem. Phys.* 2010. V. 132. P. 204701 (7pp). DOI: 10.1063/1.3407453

35. Agata S., Moritomo Y., Machida A., Kato K., Nakamura A. Oxidization control of transport properties of $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6+\delta}$ film // *Jpn. J. Appl. Phys.* 2002. V. 41. P. L688—L 690. DOI: 10.1143/JJAP41.L688

36. Kalanda N., Turchenko V., Karpinsky D., Demyanov S., Yarmolich M., Balasoiu M., Lupu N., Tyutyunnikov S., Sobolev N. A. The role of the Fe/Mo cations ordering degree and oxygen non-stoichiometry on the formation of the crystalline and magnetic structure of $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ // *Phys. Status Solidi B*. 2018. V. 256. P. 1800278 (7pp). DOI: 10.1002/pssb.201800278

Работа выполнена при финансовой поддержке Европейского союза в рамках программы Horizon 2020, H2020—MSCA—RISE—2017 (соглашение по гранту № 778308 SPINMULTIFILM).

Статья поступила в редакцию 30 сентября 2019 г.

Izvestiya vuzov. Materialy elektronnoi tekhniki = Materials of Electronics Engineering. 2019, vol. 22, no. 2, pp. 135—142. DOI: 10.17073/1609-3577-2019-2-135-142

Estimation of the degree of crystallographic ordering of magnetoactive ions in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ by means of the intensity of the X-ray peak (101)

E. Artsiukh^{1,§}, G. Suchanek²

¹ SSPA «Scientific—Practical Materials Research Centre of NAS of Belarus»,
19 P. Brovki Str., Minsk 220072, Belarus

² TU Dresden, Solid State Electronics Laboratory, Dresden 01062, Germany

Abstract. Strontium ferromolybdate ($\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$, SFMO) having a double Perovskite structure shows good promise as a basic material for spintronics. However SFMO has not yet found wide application due to the low reproducibility of its magnetic properties which partially originates from their strong dependence on the ordering degree of Fe and Mo ions in the B' and B'' sublattices of double perovskite $A_2B'B''O_6$. We have considered a rapid method of determining strontium ferromolybdate disorder degree. Sublattice population with Fe and Mo ions has been estimated for stoichiometric and nonstoichiometric $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ with a 5% Fe and Mo excess, respectively. We have calculated the intensity ratio between the superstructural ordering (101) peak and the most intense (112 + 200) peak. The calculated curves have been fitted to the analytical expression for similar cases known from literature. The calculation results obtained using this method are in agreement with the results of experimental data processing using the Rietveld method accurate to within $\pm 25\%$. Thus this method can be used instead of the Rietveld method if the exposure time set in an X-ray diffraction experiment is insufficient. We have discussed the dependence of the $I(101)/I(112 + 200)$ peak intensity ratio on various factors including diffraction peak instrumental broadening, peak twinning due to grain size reduction, thin film lattice parameter variation due to substrate lattice mismatch and lattice parameter variation due to oxygen vacancies. The method is useful as it allows evaluating the superlattice ordering degree in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ without large time consumption for X-ray diffraction pattern recording and processing with the Rietveld method which may be essential when dealing with large amounts of experimental data.

Keywords: strontium ferromolybdate, atomic ordering degree, X-ray structural analysis

References

1. Serrate D., De Teresa J. M., Ibarra M. R. Double perovskites with ferromagnetism above room temperature. *J. Phys.: Condens. Matter*, 2006, vol. 19, no. 2, p. 023201 (86pp). DOI: 10.1088/0953-8984/19/2/023201

2. Kobayashi K.-I., Kimura T., Sawada H., Terakura K., Tokura Y. Room-temperature magnetoresistance in an oxide material with an ordered double-perovskite structure. *Nature*, 1998, vol. 395, pp. 677—680. DOI: 10.1038/27167

3. Tomioka Y., Okuda T., Okimoto Y., Kumai R., Kobayashi K.-I., Tokura Y. Magnetic and electronic properties of a single crystal of ordered double perovskite $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. *Phys. Rev. B*, 2000, vol. 61, no. 1, pp. 422—427. DOI: 10.1103/PhysRevB.61.422

4. Retuerto M., Alonso J. A., Martínez-Lope M. J., Martínez J. L., García-Hernández M. Record saturation magnetization, Curie temperature, and magnetoresistance in double perovskite synthesized by wet-chemistry techniques. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, vol. 85, no. 2, pp. 266—268. DOI: 10.1063/1.1772857

5. Suchanek G., Kalanda N., Artsiukh E., Gerlach G. Challenges in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ thin film deposition. *Phys. Status Solidi (b)*, 2019, vol. 257, no. 3, p. 1900312. DOI: 10.1002/pssb.201900312

6. Balcells L., Navarro J., Bibes M., Roig A., Martínez B., Fontcuberta J. Cationic ordering control of magnetization in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ double perovskite. *Appl. Phys. Lett.*, 2001, vol. 78, pp. 781—783. DOI: 10.1063/1.1346624

7. Harnagea L., Berthet P. The effect of strontium non-stoichiometry on the physical properties of double perovskite $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. *J. Solid State Chem.*, 2015, vol. 222, pp. 115—122. DOI: 10.1016/j.jssc.2014.11.017

8. Fix T. Couches minces de $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ élaborées par ablation laser pour des jonctions tunnel magnétiques. Diss. Dr. Sci. (Phys.—Math.), Strasbourg, 2006.

9. Park B. J., Han H., Kim J., Kim Y. J., Kim C. S., Lee B. W. Correlation between anti-site disorder and magnetic properties

Information about author:

Evgenij Artsiukh^{1,§}: sirfranzferdinand@yandex.ru; Dr. **Gunnar Suchanek**²: Gunnar.Suchanek@mailbox.tu-dresden.de

§ Corresponding author

in ordered perovskite $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. *J. Magnetism and Magnetic Materials*, 2004, vol. 272, no. 3, pp. 1851—1852. DOI: 10.1016/j.jmm.2003.12.429

10. Moritomo Y., Shimamoto N., Xu S., Machida A., Nishibori E., Takata M., Sakata M., Nakamura A. Effects of B-site disorder in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ with double perovskite structure. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2001, vol. 40, pt 2, no. 7A, pp. L672—L674. DOI: 10.1143/JJAP40.L672

11. Mishra R., Restrepo O. D., Woodward P. M., Windl W. First-principles study of defective and nonstoichiometric $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. *Chemistry of Materials*, 2010, vol. 22, no. 22, pp. 6092—6102. DOI: 10.1021/cm101587e

12. Kalanda M., Suchanek G., Saad A., Demyanov S., Gerlach G. Influence of oxygen stoichiometry and cation ordering on magnetoresistive properties of $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6\pm\delta}$. *Materials Science Forum*, 2010, vol. 636—637, pp. 338—343. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.636-637.338

13. Momma K., Izumi F. VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data. *J. Appl. Cryst.*, 2011, vol. 44, pp. 1272—1276. DOI: 10.1107/S0021889811038970

14. Saloaro M., Deniz H., Huhtinen H., Palonen H., Majumdar S., Paturi P. The predominance of substrate induced defects in magnetic properties of $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ thin films. *J. Phys.: Condens. Matter*, 2015, vol. 27, p. 386001 (11pp). DOI: 10.1088/0953-8984/27/38/386001

15. Kircheisen R., Töpfer J. Nonstoichiometry. Point defects and magnetic properties in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ double perovskites. *J. Solid State Chem.*, 2015, vol. 185, pp. 76—81. DOI: 10.1016/j.jssc.2011.10.043

16. Wang J.-F., Li Z., Xu X.-J., Gu Z.-B., Yuan G.-L., Zhang S.-T. The competitive and combining effects of grain boundary and Fe/Mo antisite defects on the low-field magnetoresistance in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. *J. American Ceramic Society*, 2014, vol. 97, pp. 1137—1142. DOI: 10.1111/jace.12749

17. Kuepper K., Balasz I., Hesse H., Winiarski A., Prince K. C., Matteucci M., Wett D., Szargan R., Burzo E., Neumann M. Electronic and magnetic properties of highly ordered $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. *Phys. Status Solidi (a)*, 2004, vol. 201, no. 15, pp. 3252—3256. DOI: 10.1002/pssa.200405432

18. Sui Y., Wang X. J., Qian Z. N., Cheng J. G., Liu Z. G., Miao J. P., Li Y., Su W. H., Ong C. K. Enhancement of low-field magnetoresistance in polycrystalline $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ with doping. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, vol. 85, no. 2, pp. 269—271. DOI: 10.1063/1.1769581

19. Sarma D. D., Ray S., Tanaka K., Kobayashi A., Fujimori A., Sanyal P., Krishnamurthy H. R., Dasgupta C. Intergranular magnetoresistance in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ from a magnetic tunnel barrier mechanism across grain boundaries. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, vol. 98, p. 157205 (4pp). DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.157205

20. Hayes J. R., Grosvenor A. P. An investigation of the Fe and Mo oxidation states in $\text{Sr}_2\text{Fe}_{2-x}\text{Mo}_x\text{O}_6$ ($0.25 \leq x \leq 1.0$) double perovskites by X-ray absorption spectroscopy. *J. Alloys and Compounds*, 2012, vol. 537, pp. 323—331. DOI: 10.1016/j.jallcom.2012.05.056

21. Spiess L., Teichert G., Schwarzer R., Behnken H., Genzel C. *Moderne Röntgenbeugung: Röntgendiffraktometrie für Materialwissenschaftler, Physiker und Chemiker*. Berlin; Heidelberg; Wiesbaden: Springer Spektrum, 2019, 624 p. DOI: 10.1007/978-3-8348-8232-5

22. Izumi F., Momma K. Three-dimensional visualization in powder diffraction. *Solid State Phenomena*, 2007, vol. 130, pp. 15—20. DOI: 10.4028/www.scientific.net/SSP.130.15

23. Adeagbo W. A., Hoffmann M., Ernst A., Hergert W., Saloaro M., Paturi P., Kokko K. Tuning the probability of defect formation via substrate strains in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ films. *Phys. Rev. Mater.*, 2018, vol. 2, no. 8, p. 083604 (9pp). DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.083604

24. Liu G. Y., Rao G. H., Feng X. M., Yang H. F., Ouyang Z. W., Liu W. F., Liang J. K. Atomic ordering and magnetic properties of non-stoichiometric double-perovskite $\text{Sr}_2\text{Fe}_x\text{Mo}_{2-x}\text{O}_6$. *J. Phys.: Condens. Matter*, 2003, vol. 15, no. 12, pp. 2053—2060. DOI: 10.1088/0953-8984/15/12/322

25. Sánchez D., Alonso J. A., García-Hernández M., Martínez-Lope M. J., Martínez J. L., Møllergård A. Origin of neutron magnetic scattering in antisite-disordered $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ double perovskites. *Phys. Rev. B*, 2002, vol. 65, no. 10, p. 104426 (8pp). DOI: 10.1103/PhysRevB.65.104426

26. Navarro J., Frontera C., Rubi D., Mestres N., Fontcuberta J. Aging of $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ and related oxides. *Materials Research Bulletin*, 2003, vol. 38, no. 9—10, pp. 1477—1486. DOI: 10.1016/S0025-5408(03)00171-5

27. Huang Y. H., Karppinen M., Yamauchi H., Goodenough J. B. Systematic studies on effects of cationic ordering on structural and magnetic properties in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. *Phys. Rev. B*, 2006, vol. 73, no. 10, p. 104408 (5pp). DOI: 10.1103/PhysRevB.73.104408

28. Hu Y. C., Ge J. J., Ji Q., Lv B., Wu X. S., Cheng G. F. Synthesis and crystal structure of double-perovskite compound $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$. *Powder Diffraction*, 2010, vol. 25, pp. S17—S21. DOI: 10.1154/1.3478711

29. Zhang Q., Xu Z. F., Wang L. F., Gao S. H., Yuan S. J. Structural and electromagnetic properties driven by oxygen vacancy in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$ double perovskite. *J. Alloys and Compounds*, 2015, vol. 649, pp. 1151—1155. DOI: 10.1016/j.jallcom.2015.07.211

30. Lü M., Li J., Hao X., Yang Z., Zhou D., Meng J. Hole doping double perovskites $\text{Sr}_2\text{FeMo}_{1-x}\text{O}_6$ ($x = 0, 0.03, 0.04, 0.06$) and their Mössbauer, crystal structure and magnetic properties. *J. Phys.: Condens. Matter*, 2008, vol. 20, no. 17, p. 175213 (9pp). DOI: 10.1088/0953-8984/20/17/175213

31. Kumar N., Gaur A., Kotnala R. K. Stable Fe deficient $\text{Sr}_2\text{Fe}_{1-\delta}\text{MoO}_6$ ($0.0 < \delta < 0.10$) compound. *J. Alloys and Compounds*, 2014, vol. 601, pp. 245—250. DOI: 10.1016/j.jallcom.2014.02.173

32. Wang J.-F., Zhang J., Hu B., Gu Z.-B., Zhang S.-T. Tunable low-field magnetoresistance in $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ ceramics using organic glycerin to modify grain boundaries and Fe/Mo ordering. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2014, vol. 47, no. 44, p. 445003 (5pp). DOI: 10.1088/0022-3727/47/44/445003

33. Black D. R., Windover D., Henins A., Gil D., Filliben J., Cline J. P. Certification of NIST standard reference material 640d. *Power Diffraction*, 2010, vol. 25, no. 2, pp. 187—190. DOI: 10.1154/1.3409482

34. Jalili H., Heinig N. F., Leung K. T. Growth evolution of laser-ablated $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ nanostructured films: Effects of substrate-induced strain on the surface morphology and film quality. *J. Chem. Phys.*, 2010, vol. 132, p. 204701 (7pp). DOI: 10.1063/1.3407453

35. Agata S., Moritomo Y., Machida A., Kato K., Nakamura A. Oxidation control of transport properties of $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6+\delta}$ film. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2002, vol. 41, pp. L688—L690. DOI: 10.1143/JJAP41.L688

36. Kalanda N., Turchenko V., Karpinsky D., Demyanov S., Yarmolich M., Balasoju M., Lupu N., Tyutyunnikov S., Sobolev N. A. The role of the Fe/Mo cations ordering degree and oxygen non-stoichiometry on the formation of the crystalline and magnetic structure of $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_{6-\delta}$. *Phys. Status Solidi B*, 2018, vol. 256, p. 1800278 (7pp). DOI: 10.1002/pssb.201800278

Acknowledgments.

The work was financially supported by the European Union within the Horizon 2020, H2020-MSCA-RISE-2017 Program (Grant No. 778308 SPINMULTIFILM).

Received September 30, 2019

* * *