

Когерентная веерная магнитная структура в сверхрешетках Dy/Gd

Н. О. Антропов^{+*1)}, Е. А. Кравцов^{+*}, Ю. Н. Хайдуков^{×°}, М. В. Рябухина⁺, В. В. Пролядо⁺, О. Вешке^{∇2)},
В. В. Устинов^{+*}

⁺Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, 620108 Екатеринбург, Россия

^{*}Уральский федеральный университет, 620002 Екатеринбург, Россия

[×]Max Planck Institute for Solid State Research, 70569 Stuttgart, Germany

[°]Max Planck Society Outstation at Heinz Maier-Leibnitz Zentrum, 85748 Garching, Germany

[∇]Helmholtz-Zentrum Berlin, 12489 Berlin, Germany

Поступила в редакцию 2 июля 2018 г.

После переработки 1 августа 2018 г.

Комбинируемым применением SQUID-магнитометрии (Superconducting Quantum Interference Device, сверхпроводящее квантовое интерференционное устройство), кругового магнитного дихроизма и рефлектометрии поляризованных нейтронов определена магнитная структура псевдомонокристаллических сверхрешеток (0001)Dy/Gd и ее модификация с изменением температуры. Установлено, что в сравнительно малых магнитных полях при температурах ниже 170 К в слоях Dy формируется веерное магнитное упорядочение, которое когерентно распространяется по всей сверхрешетке. Магнитные моменты в слоях Dy при этом лежат в базовой плоскости, а в слоях Gd они ориентированы преимущественно вдоль гексагональной оси c .

DOI: 10.1134/S0370274X18170113

Тяжелые редкоземельные металлы (РЗМ), для которых характерно наличие сложной магнитной структуры и магнитных фазовых переходов в зависимости от температуры и магнитного поля [1], активно изучаются многие годы. Многослойные наноструктуры (сверхрешетки), содержащие редкоземельные металлы, представляют собой особый класс искусственных магнитных материалов, магнитные свойства которых зачастую значительно отличаются от свойств отдельных образующих их РЗМ слоев [2–4]. На сегодняшний день сравнительно хорошо изученными являются многослойные системы, образованные чередующимися слоями магнитного РЗМ и немагнитного металла Y. В частности, можно отметить такие эффекты, как осциллирующее межслойное обменное взаимодействие в сверхрешетках Gd/Y [5], несоизмеримое спиральное магнитное упорядочение [6] и индуцированное магнитным полем хиральное магнитное упорядочение [7] в сверхрешетках Dy/Y.

В отличие от вышеупомянутых систем с прослойками Y, сверхрешетки, содержащие два магнитных РЗМ, остаются малоизученными, несмотря

на то, что для них характерно наличие уникальных магнитных свойств. Один из примеров такой системы – сверхрешетки Dy/Gd, в которых 30 лет назад было обнаружено геликоидальное магнитное упорядочение с чередующейся хиральностью в слоях Dy толщиной 10 монослоев [2, 8, 9]. Большой интерес представляет изучение систем с более толстыми слоями Dy, однако, таких исследований проведено не было. На наш взгляд, трудности в экспериментальном исследовании геликоидальных систем связаны с тем, что долгие годы использовались нейтронная дифрактометрия высокого разрешения и резонансное рентгеновское магнитное рассеяние, что требовало синтеза образцов с большим количеством материала (сотни пар слоев). Сравнительно недавно были предложены методы, позволяющие исследовать магнитную структуру поверхностных геликоидально-упорядоченных слоев: резонансная рентгеновская магнитная рефлектометрия [10] и ядерно-резонансная рефлектометрия на изотопе ^{161}Dy [11].

Объемные Dy и Gd кристаллизуются в гексагональную плотноупакованную (ГПУ) фазу с близкими параметрами решетки ($a = 359.3$ пм, $c = 565.4$ пм для Dy и $a = 363.4$ пм, $c = 578.1$ пм для Gd), что позволяет синтезировать эпитаксиальные сверх-

¹⁾e-mail: nikolayantropov@yandex.ru

²⁾O. Weschke

решетки Dy/Gd методом молекулярно-лучевой эпитаксии при правильном подборе монокристаллических подложек, комбинации буферных слоев и параметров роста (температуры подложки, скорости роста) [2, 12]. Объемный Gd ниже температуры Кюри $T_C = 293$ К – ферромагнетик, магнитные моменты в котором направлены вдоль оси c вблизи температуры Кюри и отклоняются от нее на некоторый угол до 40° по мере уменьшения температуры. Объемный Dy имеет более сложную магнитную структуру: ниже температуры Кюри $T_C = 85$ К в нем формируется ферромагнитное упорядочение, причем магнитные моменты лежат вдоль оси a в базовой плоскости. Выше температуры Кюри, но ниже температуры Нееля $T_N = 179$ К в Dy реализуется несоизмеримая геликоидальная магнитная структура, магнитные моменты при этом лежат в базовой плоскости, а период геликоиды не соизмерим с постоянной решетки.

Псевдомонокристаллическая сверхрешетка $[\text{Dy}(60\text{Å})/\text{Gd}(60\text{Å})]_{20}$ была синтезирована методом высоковакуумного магнетронного распыления на монокристаллической подложке $(11\bar{2}0)\text{Al}_2\text{O}_3$ с буферными слоями $(110)\text{Nb}$ (100Å) и $(0001)\text{Y}$ (25Å), используя отработанную нами методику роста [13, 14]. Для защиты от окисления структура была закрыта защитным слоем Al толщиной 100Å . Рентгеноструктурные исследования подтвердили формирование в сверхрешетке хорошо определённой слоистой структуры с резкими межслойными границами и согласование кристаллических решеток Dy и Gd. На рисунке 1 представлена дифрактограмма для данного образца, измеренная на излучении Co K_α вдоль нормали к поверхности, которая подтверждает формирование ГПУ структуры $(0001)\text{Dy}/\text{Gd}$ вдоль направления роста. Наличие сверхрешеточных рефлексов Dy/Gd свидетельствует о структурной когерентности слоев сверхрешетки и формировании кристаллической структуры ГПУ Dy/Gd.

Наблюдающаяся тонкая структура рефлексов Dy/Gd обусловлена наличием сверхрешеточной периодичности, расстояние между сверхрешеточными пиками в Q -пространстве определяется исключительно периодом сверхрешетки и в точности соответствует значению, полученному нами их рентгеновской рефлектометрии.

Высокое качество кристаллической структуры полученных систем подтверждается измерениями рентгеновской дифракции вблизи асимметричных брегговских рефлексов. На рисунке 2 приведено значение интенсивности асимметричного брегговского рефлекса Dy/Gd $(\bar{1}05)$ при вращении образца вокруг

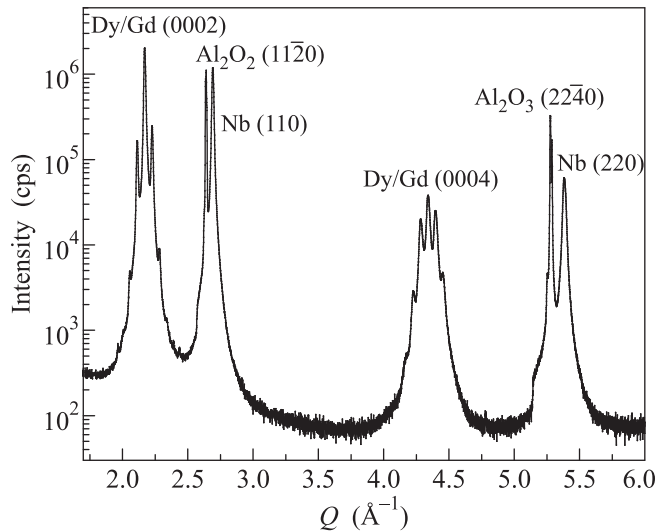


Рис. 1. Дифрактограмма от образца $[\text{Dy}(60\text{Å})/\text{Gd}(60\text{Å})]_{20}$, измеренная вдоль направления роста образца, задаваемого ориентацией подложки $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$

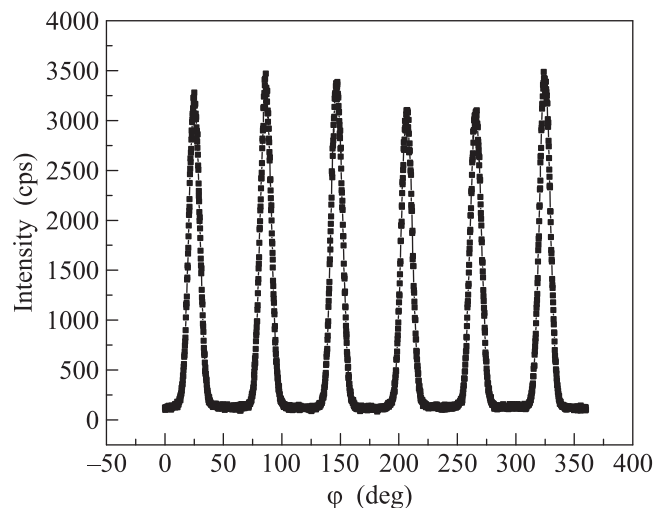


Рис. 2. Диаграмма интенсивности асимметричного брегговского рефлекса Dy/Gd $(\bar{1}05)$ при вращении образца вокруг нормали к поверхности

нормали к поверхности. Наличие оси шестого порядка структуры ГПУ свидетельствует о высоком качестве “псевдомонокристаллической сверхрешетки”.

Магнитные свойства сверхрешетки были определены из данных низкотемпературной SQUID-магнитометрии (Superconducting Quantum Interference Device – сверхпроводящее квантовое интерференционное устройство) и элементарно-чувствительной рентгеновской магнитометрии, основанной на использовании кругового рентгеновского дихроизма (XMCD – x-ray magnetic circular

dichroism – рентгеновский магнитный циркулярный дихроизм) на источнике синхротронного излучения. На рисунке 3 приведена температурная зависимость

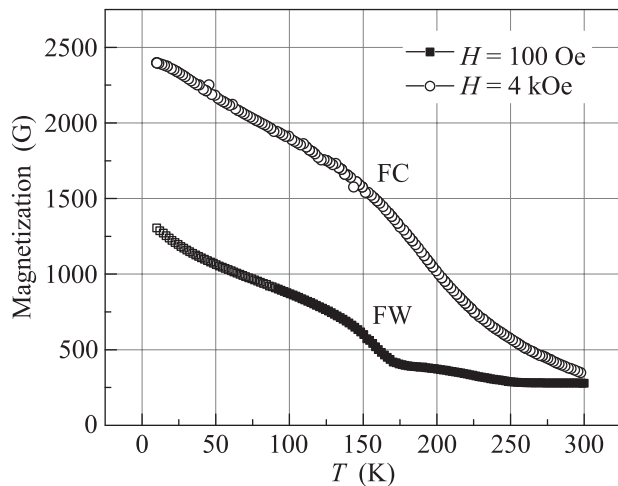


Рис. 3. Температурная зависимость намагниченности для сверхрешетки $[\text{Dy}(60 \text{ \AA})/\text{Gd}(60 \text{ \AA})]_{20}$, измеренная при охлаждении в поле 40 кЭ (FC) и при нагревании в поле 100 Э (FW), магнитное поле было приложено в базовой плоскости образца

намагниченности сверхрешетки Dy/Gd, измеренная при охлаждении образца (FC) в магнитном поле $H = 40 \text{ кЭ}$ и при нагревании (FW) его в поле $H = 100 \text{ Э}$. Наблюдаемая на графике особенность вблизи $T = 170 \text{ К}$, скорее всего, связана с магнитным фазовым переходом в Dy из парамагнитного в антиферромагнитное состояние. Никаких особенностей, свидетельствующих о переходе Dy из антиферромагнитного состояния в ферромагнитное не наблюдается.

На рисунке 4 приведена петля гистерезиса для данного образца, измеренная при $T = 10 \text{ К}$ при приложении магнитного поля в базовой плоскости (левая шкала), а также элементарно-зависимые петли гистерезиса для Dy и Gd (в относительных единицах). Последние были измерены на станции UE46-PGM1 на источнике синхротронного излучения BESSY2 (Берлин) следующим образом: сначала была измерена зависимость сигнала XMCD от энергии вблизи M_5 краев поглощения Dy и Gd в магнитном поле $H = 30 \text{ кЭ}$ и определены значения энергии, при которых наблюдается максимальный сигнал (зависимости и выбранные значения энергии фотонов приведены на вставке к рис. 4). Далее были измерены зависимости сигнала XMCD от магнитного поля при фиксированных значениях энергии (в отно-

сительных единицах они приведены на правой шкале рис. 4).

Как следует из приведенных данных, значение намагниченности насыщения сверхрешетки Dy/Gd близко к ожидаемому значению для смеси объемных материалов Dy и Gd (2900 Гс для Dy и 2100 Гс для Gd). В ремагнитном состоянии основной вклад в намагниченность дает Dy, а Gd, скорее всего, намагничен вдоль оси c перпендикулярно поверхности образца. Большая коэрцитивность сверхрешетки обусловлена, главным образом, также вкладом от Dy. Толщинные зависимости магнитных моментов в сверхрешетке были определены с помощью рефлектометрии поляризованных нейтронов, измерения были выполнены на рефлектометре NREX, установленном на реакторе FRM2 (Гархинг). На рисунке 5 приведены нейтронные рефлектограммы для исследуемого образца, измеренные при различных температурах от 10 до 170 К в магнитном поле $H = 100 \text{ Э}$. Измерения были выполнены с полным поляризационным анализом, но мы приводим данные для рассеяния нейтронов без переворота спина (R_{++} и R_{--}), так как рассеяние с переворотом спина было незначительно и нами не приводится. Полученные в результате обработки рефлектометрических кривых профили намагниченности схематически представлены на рис. 6.

Следует отметить, что для сверхрешеток, образованных чередующимися слоями равной толщины, на рентгеновских рефлектограммах будут подавлены сверхрешеточные пики четных порядков. Это наблюдается и в нашем случае, как видно из графика на рис. 5, где присутствует только сверхрешеточный брегговский пик первого порядка. На нейтронных рефлектограммах сверхрешеточные рефлекты четных порядков будут отсутствовать в случае, если, помимо отмеченного выше равенства толщин слоев, будут совпадать периоды ядерной и магнитной структуры. Это и наблюдается на нейтронной рефлектограмме, измеренной при температуре $T = 170 \text{ К}$. Тот факт, что кривые для R_{++} и R_{--} практически совпадают, свидетельствует об отсутствии магнитного контраста в плоскости образца (нейтроны не чувствительны к компоненте намагниченности, перпендикулярной к поверхности образца): Dy парамагнитен, а магнитные моменты в слоях Gd ориентированы нормально к поверхности образца. При понижении температуры до $T = 100 \text{ К}$ магнитная структура кардинально меняется. Во-первых, появляется компонента намагниченности в плоскости слоев, так как кривые R_{++} и R_{--} отличаются, моделирование показывает, что моменты Dy в основном лежат в плоскости слоев. Во-вторых, на нейтронных рефлектограммах

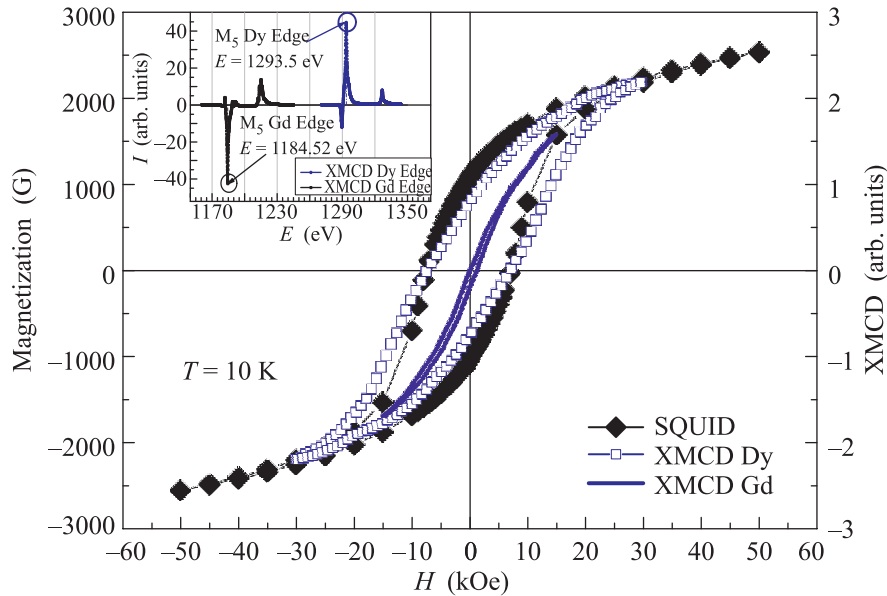


Рис. 4. (Цветной онлайн) Петля гистерезиса, измеренная при температуре $T = 10$ К (левая шкала) и полевые зависимости сигнала XMCD Dy и Gd на соответствующих M_5 краях поглощения данных элементов (правая шкала). На вставке приведены спектры XMCD, измеренные в магнитном поле $H = 30$ кЭ и выбранные значения энергии фотонов для измерения полевых зависимостей (1293.5 эВ для Dy и 1184.52 эВ для Gd)

появляются две характерные особенности, которые невозможно объяснить в модели однородно намагниченных слоев: позиция сверхрешеточного брегговского пика первого порядка отличается для R_{++} и R_{--} , и появляется пик второго порядка. Эти две особенности можно объяснить только в модели неоднородного распределения намагниченности в сверхрешетке, причем магнитный период отличается от структурного, т.е., появлением геликоидального магнитного упорядочения в слоях Dy. При дальнейшем понижении температуры до $T = 10$ К переход Dy к ферромагнитному упорядочению не наблюдается и геликоидальный магнитный порядок в сверхрешетке сохраняется. Можно выделить следующие характерные особенности данных, представленных на рис. 5 и 6.

1. Отсутствие спин-зависящего рассеяния говорит о том, что магнитные моменты либо лежат в плоскости рассеяния, либо образец разбит на домены, размеры которых существенно меньше корреляционной длины нейтронного пучка и усреднение которых приводит к компенсации перпендикулярной компоненты намагниченности.

2. Наблюдается неоднородное изменение магнитных моментов внутри слоев Dy, а именно, увеличение их величины вблизи межслойных границ и уменьшение в центре слоя. Такая зависимость характерна для так называемой “веерной” фазы, которая наблюда-

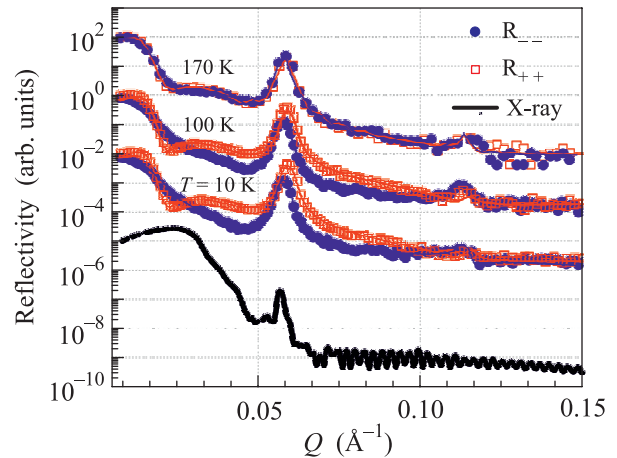


Рис. 5. (Цветной онлайн) Нейтронные рефлектометрические кривые, измеренные при температурах 10, 100, 170 К в внешнем магнитном поле $H = 100$ Э (символы) и результат их моделирования (сплошные линии). Нижняя кривая – спектр рентгеновской рефлектометрии. Кривые сдвинуты по оси ординат для удобства представления

ется в объемном Dy вблизи температуры магнитного фазового перехода при приложении больших магнитных полей. В нашем случае эта фаза возникает в сравнительно слабом поле $H = 100$ Э и во всем температурном интервале вплоть до температуры Нейля для Dy. Похожее неоднородное распределение маг-

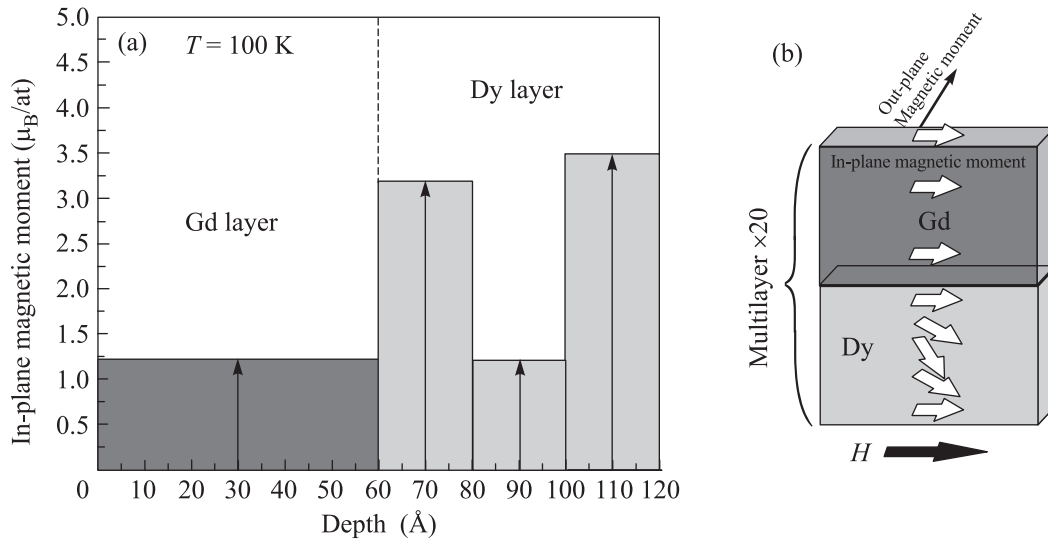


Рис. 6. Распределение проекций магнитных моментов в плоскости образца с глубиной в сверхрешетке Dy/Gd при температуре 100 К и схематическое изображение магнитного домена с “веерной” фазой внутри слоев Dy

нитных моментов в ферромагнитных оксидах было описано в работе [15].

3. Наблюдается полное подавление магнитного фазового перехода в ферромагнитное состояние в Dy, что, по аналогии с системами Dy/Y [2], можно объяснить сжатием кристаллической решетки Dy в базовой плоскости.

4. При температурах ниже температуры Нейля Dy на рефлектограммах наблюдается запрещенный брегговский пик второго порядка, интенсивность которого зависит от температуры. Возникновение данного пика обусловлено исключительно неоднородным распределением магнитных моментов внутри слоев Dy, которое когерентно распространяется по всей сверхрешетке.

5. Магнитные моменты в слоях Gd ориентированы преимущественно вдоль нормали к поверхности образца, в частности, при температуре $T = 10$ К их отклонение от гексагональной оси c составляет примерно 10° .

В заключение, комбинированным применением SQUID-магнитометрии, кругового магнитного дихроизма и рефлектометрии поляризованных нейтронов нами исследованы магнитные свойства сверхрешеток Dy/Gd. Впервые установлено, что в сравнительно малых магнитных полях ($H = 100$ Э) при температурах ниже 170 К в слоях Dy формируется веерное магнитное упорядочение, которое когерентно распространяется по всей сверхрешетке. Магнитные моменты в слоях Dy при этом лежат в базовой плоскости, а в слоях Gd они ориентированы преимущественно вдоль гексагональной оси c .

Работа выполнена в рамках государственного задания по теме “Спин” АААА-А18-118020290104-2 и проекту 18-10-2-37 комплексной программы УрО РАН, при поддержке Российского Фонда Фундаментальных Исследований (грант 16-02-00061), согласно контракту Минобрнауки 14.Z50.31.0025.

1. R. J. Elliott, *Magnetic Properties of Rare Earth Metals*, Plenum, N.Y. (1972), 430 p.
2. C. F. Majkrzak, J. Kwo, M. Yjng, Y. Yafet, D. Gibbs, C. L. Chen, and J. Bohr, *Adv. Phys.* **40**, 99 (1991).
3. J. J. Rhyne and R. W. Erwin, *Magnetism in artificial metallic superlattices of rare earth metals*, in: *Handbook of Magnetic Materials* **8**, 1 (1995).
4. C. P. Flynn and M. B. Salamon, *Synthesis and properties of single-crystal nanostructures*, in: *Handbook of the Physics and Chemistry of Rare Earths* **22**, 1 (1970).
5. C. F. Majkrzak, J. W. Cable, J. Kwo, M. Yjng, D. B. McWhan, Y. Yafet, J. V. Waszczak, and C. Vettier, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 2700 (1986).
6. M. B. Salamon, Sh. Sinha, J. J. Rhyne, J. E. Cunningham, R. W. Erwin, J. Borchers, and C. P. Flynn, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 259 (1986).
7. S. V. Grigoriev, Yu. O. Chetverikov, D. Lott, and A. Schreyer, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 197203 (2008).
8. R. E. Camley, J. Kwo, M. Hong, and C. L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2703 (1990).
9. C. F. Majkrzak, D. Gibbs, P. Boni, A. I. Goldman, J. W. Cable, J. Kwo, M. Hong, T. C. Hsieh, R. M. Fleming, D. B. McWhan, Y. Yafet, J. W. Cable, J. Bohr, H. Grimm, and C. L. Chien, *J. Appl. Phys.* **63**, 3447 (1988).

10. H. Ott, C. Schussler-Langeheine, E. Schierle, E. Weschke, and G. Kaindl, *Phys. Rev. B* **82**, 214408 (2010).
11. А. Андреева, Р.А. Баулин, Н.О. Антропов, Е.А. Кравцов, М.В. Рябухина, В.В. Попов, В.В. Устинов, А.И. Чумаков, Р. Рюффер, *Письма в ЖЭТФ* **107**, 198 (2018).
12. J. Kwo, E.M. Gyorgy, D.V. McWhan, H. Hong, F.J. DiSalvo, C. Vettier, and J.E. Bower, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 1402 (1985).
13. М.А. Андреева, Н.О. Антропов, Р.А. Баулин, Е.А. Кравцов, М.В. Рябухина, Е.М. Якунина, В.В. Устинов, *Физ. Мет. Металловед.* **117**, 1247 (2016).
14. Н.О. Антропов, Е.А. Кравцов, В.В. Проглядо, М.В. Рябухина, В.В. Устинов, *Физ. Мет. Металловед.* **118**, 1283 (2017).
15. J.-H. Kim, I. Vrejoiu, Y. Khaydukov, T. Keller, J. Stahn, A. Rühm, D.K. Satapathy, V. Hinkov, and B. Keimer, *Phys. Rev. B* **86**, 180402 (2012).