

Магнитные свойства гетероструктуры $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ на подложке NdGaO_3

Т. А. Шайхулов^{a,1)}, А. Р. Сафин^{a,b}, К. Л. Станкевич^c, А. В. Матасов^b, М. П. Темиряева^d, Д. А. Винник^e,
В. Е. Живулин^e, С. А. Никитов^{a,f}

^aИнститут радиоэлектроники им. В. А. Котельникова РАН, 125009 Москва, Россия

^bНациональный исследовательский университет “МЭИ”, 111250 Москва, Россия

^cМосковский государственный университет имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

^dФрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, 141190 Фрязино, Россия

^eЮжно-Уральский государственный университет, 454080 Челябинск, Россия

^fМосковский физико-технический институт, 141701 Долгопрудный, Россия

Поступила в редакцию 16 марта 2023 г.

После переработки 21 марта 2023 г.

Принята к публикации 22 марта 2023 г.

Эпитаксиальная гетероструктура на основе манганитных пленок стронция и лантана-стронция (SrMnO_3 и $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$) изучалась в данной работе. Измерены спектры ферромагнитного резонанса, угловые зависимости резонансного поля при различных температурах, плоскостная и кубическая анизотропия, а также температурные зависимости намагниченности. Полученные магнитные параметры гетероструктуры сравнивались с магнитными параметрами одиночной пленки $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$. Мы предполагаем, что наличие межслоевого обмена на границе раздела ферромагнетик–антиферромагнетик при низких температурах приводит к возникновению однонаправленной анизотропии в гетероструктуре $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$. Мы полагаем, что представленные результаты будут полезны для практической разработки сверхбыстродействующих устройств на основе антиферромагнетиков: излучателей, усилителей, детекторов.

DOI: 10.31857/S1234567823080104, EDN: wgohch

Перовскитные манганиты демонстрируют различные интересные физические явления, в том числе колоссальное магнитосопротивление (КМС). Ожидается, что из-за сосуществующих спиновых, зарядовых и орбитальных степеней свободы граничные слои между различными оксидами в гетероструктурах будут демонстрировать гораздо более богатую физику, чем их обычные полупроводниковые аналоги. Были обнаружены новые межфазные электронные состояния и некоторые интересные явления [1–12]. Например, ферромагнитное упорядочение наблюдалось в пленке иридата SrIrO_3 . Иридат был верхним слоем гетероструктуры $\text{SrIrO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ [13]. Эпитаксиальные гетероструктуры манганитов смешанной валентности открывают возможности для создания устройств, основанных на магнитных явлениях и конкурирующих взаимодействиях на границах раздела. Одним из межфазных эффектов является возникновение

дополнительной однонаправленной анизотропии, ее возникновение объясняется обменным взаимодействием между ферромагнитными (ФМ) и антиферромагнитными (АФМ) спинами на границе раздела. Манганиты со структурой перовскита хорошо подходят для изучения интерфейсных эффектов, возникающих в бислоях ферромагнетик/антиферромагнетик, поскольку имеют богатые фазовые диаграммы с несколькими магнитными порядками [14, 15].

Ранее несколько экспериментов продемонстрировали, что тонкий слой АФМ может преобразовывать и эффективно усиливать спиновый ток [16, 17]. ФМ-слой, управляемый ФМ резонансом, возбуждает спиновый ток, который трансформируется в АФМ-слое и может быть обнаружен обратным спиновым эффектом Холла [18, 19]. Одной из самых интригующих особенностей было то, что величина спинового тока, при наличии АФМ слоя, превышает значение величины спинового тока при отсутствии АФМ слоя. Таким образом, изучение гетероструктур АФМ/ФМ

¹⁾e-mail: shcaihulov@hitech.cplire.ru

имеет большие прикладные перспективы в спинтронике.

АФМ оксиды имеют большой потенциал для создания устройств спинтроники следующего поколения благодаря уникальным свойствам, таким как устойчивость к внешним магнитным полям и сверхбыстрое спиновое возбуждение. Благодаря сильному обменному взаимодействию резонансные частоты антиферромагнетиков находятся в терагерцовом или субтерагерцовом режиме, что важно для быстродействующих приложений спинтроники [20].

Манганит со стехиометрией $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO) является одним из самых перспективных материалов среди $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ манганитов благодаря своим уникальным магнитным и магнито-транспортным свойствам. В процессе роста пленки несоответствие кристаллических решеток пленки и подложки приводит к возникновению напряжений в слое LSMO, влияющих на его магнитные и магнитотранспортные свойства.

SrMnO_3 (SMO) принадлежит к семейству $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$. Обычно он имеет три различные полиморфные фазы, а именно, кубическую, 4H- и 6H-гексагональную фазы, стабилизированные при разных температурах роста [21]. Все фазы обладают свойствами АФМ изолятора G -типа при температуре Нееля (T_N), которая варьируется от 260 до 278 K [21, 22]. АФМ обмен в объемном SMO определяется сверхобменным взаимодействием между ионами Mn^{4+} , что сохраняет вырожденность Mn^{4+} орбиталей. С другой стороны, тонкие пленки SMO могут использоваться для демонстрации широкого диапазона магнитного упорядочения. Например, при разных эпитаксиальных рассогласованиях между подложкой и пленкой антиферромагнитное упорядочение в тонких пленках SMO может быть перестроено с G -типа на C/A -тип [23, 24].

В данной работе мы представляем новые экспериментальные результаты по магнитным характеристикам гетероструктуры $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{NdGaO}_3$ в широком диапазоне температур.

Гетероструктуры были изготовлены методом магнетронного высокочастотного (ВЧ) напыления на плоскость (110) подложки из монокристаллического галлата неодима NdGaO_3 (NGO) при температуре $T = 800^\circ\text{C}$ и давлении кислорода 0.5 мбар для слоев $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO) [12] и SrMnO_3 (SMO). Толщина пленки (LSMO) в исследуемой гетероструктуре составляла 44 нм, а толщина пленки SrMnO_3 (SMO) была 5 нм. Кристаллическую структуру гетерострук-

туры анализировали с помощью рентгеновской дифрактометрии [25].

Рентгенофазовый анализ (РФА) синтезированного образца выполнен на рентгеновском дифрактометре ДРОН-4 с использованием фильтрованного $\text{CuK}\alpha 1$ излучения. Результат рентгенофазового анализа гетероструктуры толщиной 49 нм представлен на рис. 1а, четыре рефлекса, соответствующие подложке [220] NGO, пленке SMO, а также пленке LSMO (нижняя часть гетероструктуры) и пленке LSMO (верхняя часть гетероструктуры).

В соответствии с результатами рентгеновских данных слой LSMO испытывает деформацию растяжения за счет его эпитаксиального роста на подложке NGO. На рисунке 1а показано, что манганит имеет 2 фазы с разными параметрами кристаллической решетки (для нижнего слоя, близкого к подложке) $c_1 = 3.875 \text{ \AA}$, (верхняя часть гетероструктуры) $c_2 = 3.908 \text{ \AA}$, что хорошо согласуется со спектрами ФМ резонанса (ФМР) на рис. 2 и 3b, где показаны 2 спектра ФМР с разными магнитными параметрами. Постоянная решетки слоя SMO по оси c составляет 3.858 \AA , что почти совпадает с объемным значением 3.857 \AA , что указывает на то, что слой SMO не испытывает деформации растяжения с этой подложкой. На основании полученного параметра кристаллической решетки c можно сделать вывод, что пленочный SMO имеет АФМ порядок G -типа ниже температуры Нееля [24]. Измерения атомно-силовой микроскопии гетероструктуры SMO/LSMO, показанные на рис. 1b, среднеквадратичная шероховатость гетероструктуры равна 3.1 нм.

В отсутствие какого-либо внешнего воздействия вектор намагниченности в ферромагнетике направлен вдоль резонансного поля для спектров ФМР одиночной пленки LSMO и гетероструктуры SMO/LSMO. Все спектры сняты на образцах размером $5 \times 5 \text{ мм}^2$ при условии, что внешнее постоянное магнитное поле лежит в плоскости образца (параллельная ориентация), а магнитная составляющая сверхвысокочастотного (СВЧ) поля направлена по нормали к пленке. Измерения проводились на стандартном спектрометре Bruker ER 200 на частоте 9.6 ГГц и при комнатной температуре.

На рисунке 2а, b представлены полученные спектры поглощения ФМР чистой пленки LSMO (44 нм), двухслойного LSMO (44 нм)/SMO (5 нм), измерения при $f = 9.6 \text{ ГГц}$ показывают, что пленка SMO толщиной 5 нм значительно уширяет ширину линии ФМР. Это указывает на то, что неупорядоченный АФМ (выше температуры Нееля) SMO играет важную роль в затухании LSMO. Слой SMO толщиной 5 нм

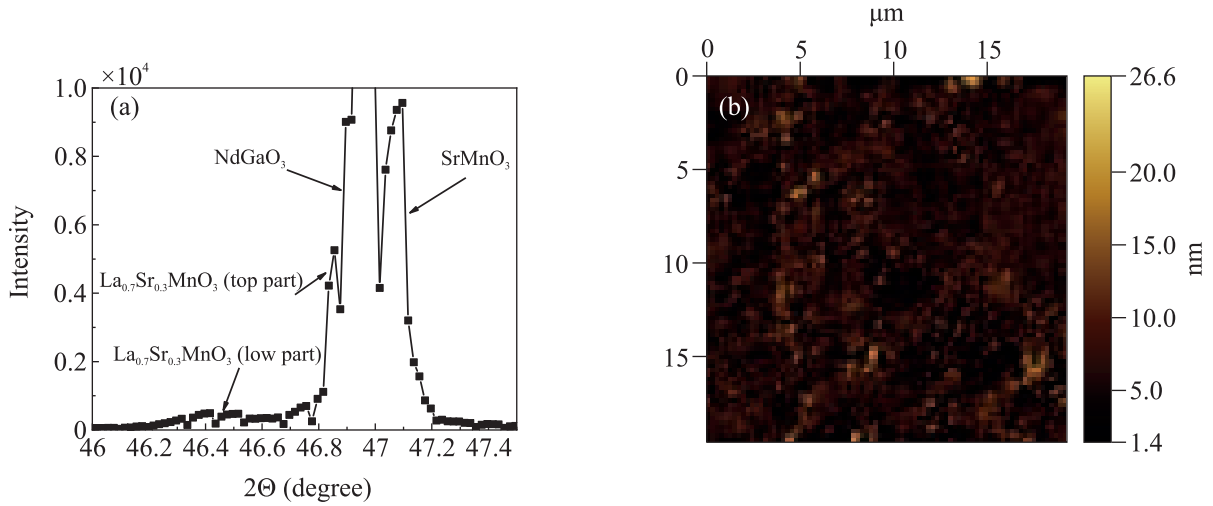


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Дифрактограмма брэгговского отражения гетероструктуры SrMnO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ выращенной на подложке NGO. (б) – Анализ поверхности с помощью сканирующего атомно-силового микроскопа

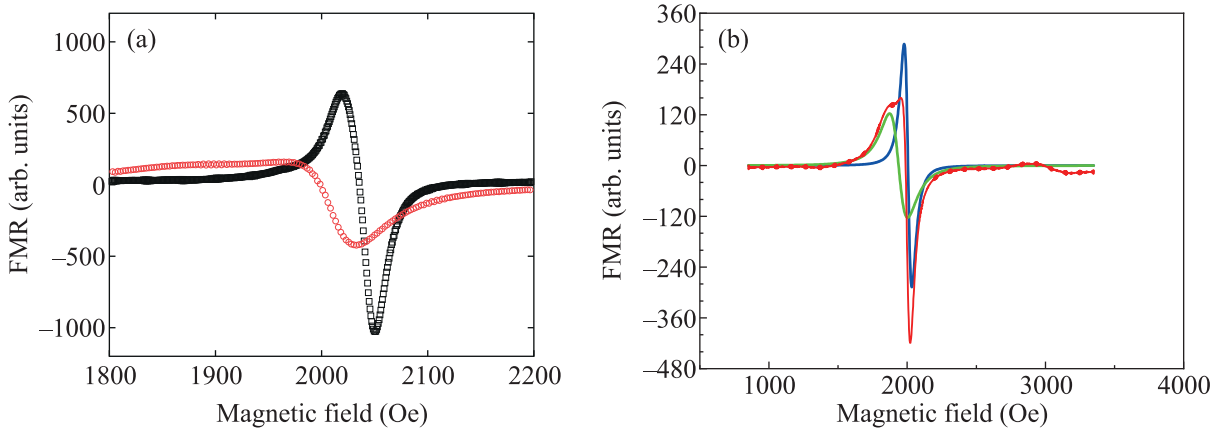


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Спектры гетероструктуры SrMnO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ (круги), La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ пленки (квадраты); магнитное поле в обоих случаях задавалось вдоль оси легкого намагничивания. (б) – Спектры верхней части гетероструктуры (синяя линия) и нижней части гетероструктуры слой (зеленая линия), экспериментальная кривая (красная линия) гетероструктуры SrMnO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃

явно увеличивает затухание в LSMO. Этот результат можно объяснить сильным присутствием спин-орбитального взаимодействия в SMO или каким-то слабым АФМ упорядочением, которое могло бы объяснить значительное уширение линии в ФМ [16].

Метод определения параметров магнитной анизотропии заключается в обработке угловых зависимостей резонансных полей спектров ФМР. Решение уравнения Ландау–Лифшица для эволюции намагниченности M_{eff} во внешнем постоянном магнитном поле H под действием магнитной составляющей радиочастотного поля дает аналитическое соотношение для резонансного поля H_0 и частоты ω для системы с одним ФМ слоем [26].

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left(4\pi M_{\text{eff}} + H_0 + H_u \cos^2 \varphi_u + \frac{H_c}{2} (1 + \cos^2 2\varphi_c)\right) \times (H_0 + H_u \cos 2\varphi_u + H_c \cos 4\varphi_c). \quad (1)$$

Здесь M_{eff} – эффективная намагниченность, представляющая собой сумму равновесной намагниченности и некоторых других возможных эффектов, таких как межслоевые взаимодействия [27], H_u и H_c – поля одноосной и кубической анизотропии, φ_u и φ_c – углы между легкой осью одноосной и кубической анизотропии и внешним магнитным полем соответственно. Здесь H_u , H_c , M_{eff} , а так же

углы φ_u и φ_c были получены путем подгонки экспериментальных данных с помощью уравнения (1), описывающего угловые зависимости резонансного поля (см. рис. 3).

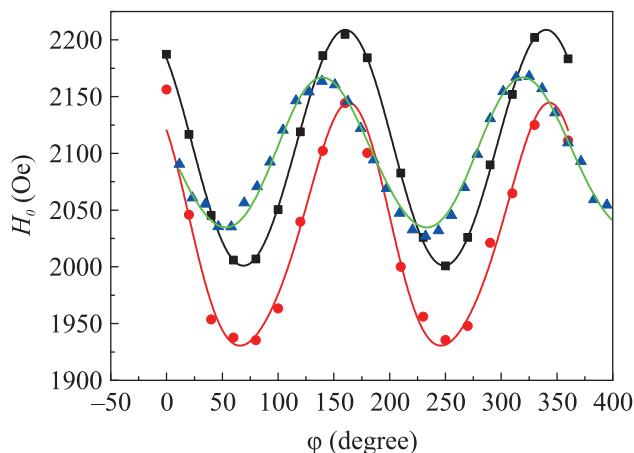


Рис. 3. (Цветной онлайн) Угловая зависимость резонансного поля пленки одиночного $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ пленка (синие квадраты), угловая зависимость резонансного поля обеих линий $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ гетероструктура (черные квадраты и красные кружки). Сплошные линии, описывающие экспериментальные точки, являются линиями аппроксимации, полученной из уравнения (1)

Здесь угол φ измерялся от одной из граней подложки. Таким образом, направления легких осей также определяются относительно этой грани. Большое количество полученных точек позволяет определить подгоночные параметры уравнения (1). Данные о температурных изменениях как параметров M_{eff} (рис. 4а), так и параметров магнитной анизотропии (рис. 5а, б) были получены путем аналогичной обработки угловых зависимостей спектров ФМР, снятых при различных температурах. На рисунке 2б представлены спектр одиночной пленки LSMO и спектр гетероструктуры SMO/LSMO, измеренные во внешнем магнитном поле, ориентированном вдоль оси легкого намагничивания.

В целом из рис. 3 можно судить об изменении магнитных параметров каждой части гетероструктуры. Для пленки LSMO, которая является нижней частью гетероструктуры, магнитные параметры $M_{\text{eff}} = 308 \text{ Э}$, $H_u = 122 \text{ Э}$, $H_c = 13 \text{ Э}$, для слоя LSMO, граничащего с пленкой SMO $M_{\text{eff}} = 286 \text{ Э}$, $H_u = 120 \text{ Э}$, $H_c = 3 \text{ Э}$ по сравнению с одиночной пленкой LSMO $M_{\text{eff}} = 289 \text{ Э}$, $H_u = 76 \text{ Э}$, $H_c = 3 \text{ Э}$, о чем свидетельствуют различия в угловой зависимости, представленной на рис. 3, и изменения спектра линии на рис. 2а, б. Интересно отметить увеличение

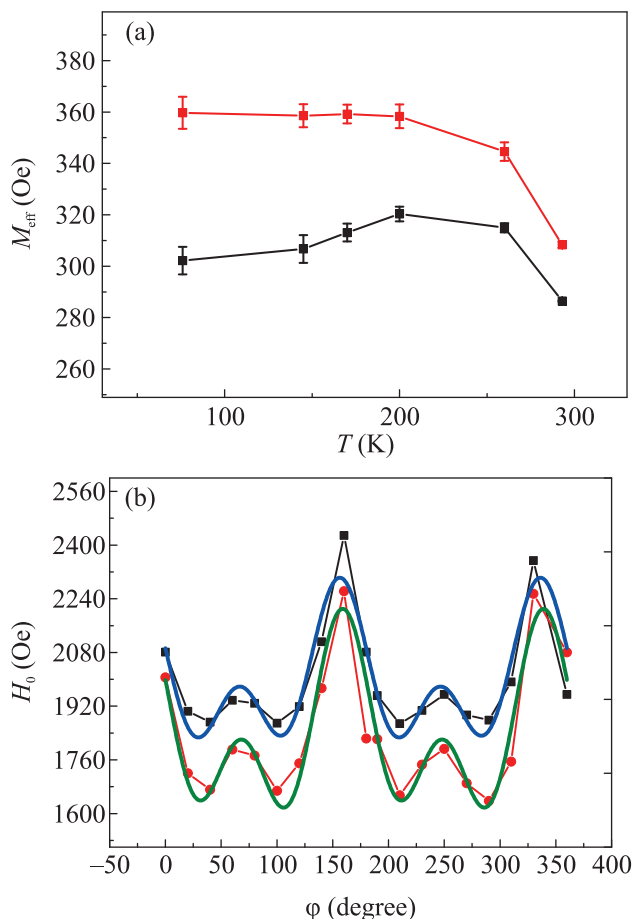


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Температурная зависимость намагниченности для различных слоев гетероструктуры $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$. Нижняя часть гетероструктуры (красные кружки), верхняя часть гетероструктуры (черные квадраты). Ошибка обозначена полусой ошибки (черная и красная). (б) – Угловая зависимость резонансного поля каждой из линий гетероструктуры (черные квадраты и красные кружки) $\text{SrMnO}_3/\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$, аппроксимация верхней части гетероструктуры (синяя линия), нижней части гетероструктуры (зеленая линия) при $T = 75 \text{ K}$

плоскостной анизотропии для обеих частей гетероструктуры SMO/LSMO по сравнению с одиночной пленкой. Мы полагаем, что объяснение этого эффекта заключается в появлении дополнительной анизотропии на границе между ферромагнитной пленкой LSMO и парамагнитной пленкой SMO.

На рисунке 4а представлены температурные зависимости намагниченности двух частей гетероструктуры SMO/LSMO, намагниченность нижней части гетероструктуры (красные кружки), скорее всего, относится к чистой пленке LSMO, в связи с тем, что она показывает типичную монотонное из-

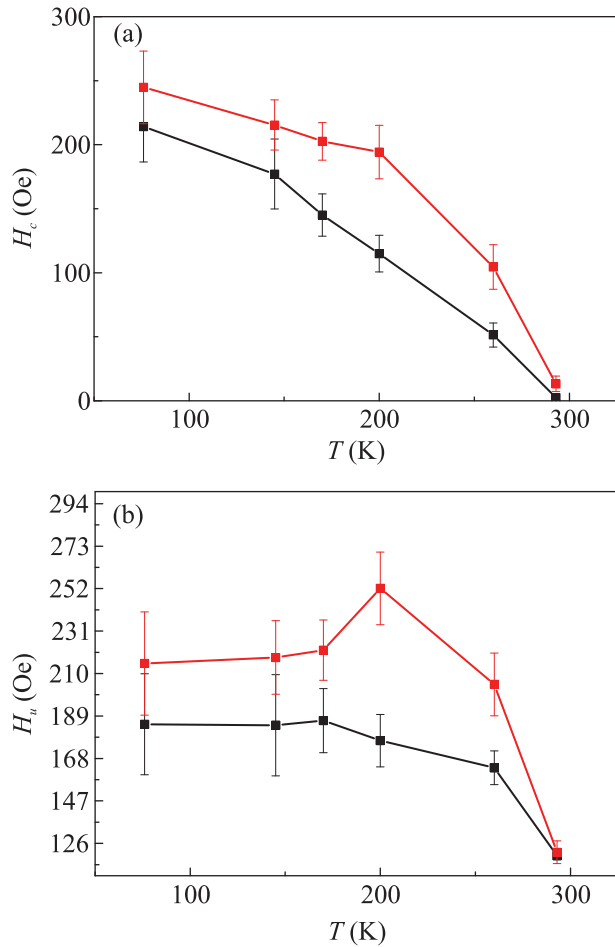


Рис. 5. (Цветной онлайн) Температурная зависимость для различных слоев гетероструктуры SrMnO₃/La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃. Нижняя часть гетероструктуры (красные кружки), верхняя часть гетероструктуры (черные квадраты): (a) – кубической анизотропии; (b) – одноосная анизотропия. На ошибку указывает полоса ошибок (черная и красная)

менение намагниченности одиночной пленки LSMO при понижении температуры [28, 29].

Уменьшение намагниченности верхней части гетероструктуры (пленка LSMO, образующая контакт с АФМ пленкой SMO с температурой Нееля около 200 К) с температурой указывает на появление дополнительного обменного взаимодействия на границе раздела при 200 К (рис. 4а). Это также является причиной того, что уравнение (1) может описывать поведение намагниченности только в одной части пленки ферромагнетика. При наличии другого спин-активного слоя, контактирующего с ФМ пленкой, может проявиться межфазное взаимодействие, которое проявится как дополнительный член в свободной энергии ФМ пленки. В результате уравнение (1) уже

не будет адекватно описывать связь между частотой и внешним магнитным полем в условиях ФМР, а намагниченность M_0 будет заменена на M_{eff} . Аналогичная проблема наблюдалась нами в работе [13]. Итак, мы предполагаем, что дополнительный член указывает на появление межфазного спин-спинового гамильтониана для бислоев АФМ/ФМ, подробно описанного в [30].

Рисунок 4b подтверждает переход пленки SMO из парамагнитного в АФМ состояние. В гетероструктуре АФМ/ФМ вместо одноосной анизотропии (две эквивалентные легкие конфигурации в противоположных направлениях) намагниченность в системах АФМ/ФМ имеет только одно легкое направление, часто называемое однонаправленной анизотропией, появление антисимметричных пиков в угловой зависимости верхней части гетероструктуры (часть пленки LSMO, граничащей с пленкой антиферромагнетика SMO) свидетельствует о появлении однонаправленной анизотропии в верхней части гетероструктуры, что объясняется возникновением обменного взаимодействия на границе АФМ/ФМ [30].

Также из уравнения (1) были получены температурные зависимости для кубической и одноосной анизотропии. В случае части пленки (красные кружки), которая, как мы полагаем, не взаимодействует с пленкой SMO, температурная зависимость каждой из анизотропий вполне типична для пленки чистого манганита. Увеличение плоскостной анизотропии нижнего слоя, возможно, связано с растяжением кристаллической решетки в направлении c (рис. 1). Для верхней части гетероструктуры определить поле анизотропии затруднительно, поскольку, как объяснялось выше, для поведения намагниченности, уравнение (1) нельзя корректно использовать для определения магнитных параметров верхней части гетероструктуры [31].

В настоящей работе представлены экспериментальные данные, демонстрирующие в интервале температур 300–70 К проявление дополнительного взаимодействия, возникающего на границе раздела гетероструктуры SMO/LSMO. Наблюдаемый эффект, как мы предполагаем, является следствием интерфейсной связи за счет обменного взаимодействия между антиферромагнетиком (SrMnO₃) и ферромагнетиком (La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃). Наши результаты стали еще одним доказательством разнообразия фазовых характеристик манганитов, возникающих на межфазных границах. Мы считаем, что наши результаты будут полезны для разработки перестраиваемых, высокочувствительных и сверхбыстродействующих устройств спинтроники на основе антиферро-

магнетиков, таких как излучатели, усилители, детекторы.

Авторы выражают благодарность В. В. Демидову за помощь в проведении эксперимента и полезные обсуждения.

Измерения резонансных характеристик образцов было проведено при поддержке Российского научного фонда # 21-79-10396, обработка экспериментальных результатов выполнена в рамках гранта Российского научного фонда # 19-19-00607-Р.

1. J. Mannhart and D.G. Schlom, *Science* **327**, 1607 (2010).
2. Z.V. Gareeva and X.M. Chen, *JETP Lett.* **114**, 215 (2022).
3. K.V. Voronin, I.S. Lobanov, and V.M. Uzdin, *JETP Lett.* **116**, 242 (2022).
4. P. Zubko, S. Gariglio, M. Gabay, P. Ghosez, and J.M. Triscone, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **2**, 141 (2011).
5. M. Bibes, J.E. Villegas, and A. Barthelemy, *Adv. Phys.* **60**, 5 (2011).
6. H.Y. Hwang, Y. Iwasa, M. Kawasaki, B. Keimer, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Nat. Mater.* **11**, 103 (2012).
7. M. Gibert, P. Zubko, R. Scherwitzl, J. Iniguez, and J.M. Triscone, *Nat. Mater.* **11**, 195 (2012).
8. A. Bhattacharya, S.J. May, S.G.E. te Velthuis, M. Warusawithana, X. Zhai, B. Jiang, J.M. Zuo, M.R. Fitzsimmons, S.D. Bader, and J.N. Eckstein, *Phys. Rev.* **100**, 257203 (2008).
9. J.W. Seo, W. Prellier, P. Padhan, P. Boullay, J.Y. Kim, H. Lee, C.D. Batista, I. Martin, E.E.M. Chia, T. Wu, B.G. Cho, and C. Panagopoulos, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 167206 (2010).
10. N. Kida, H. Yamada, H. Sato, T. Arima, M. Kawasaki, H. Akoh, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 197404 (2007).
11. I.F. Sharafullin and H.T. Diep, *JETP Lett.* **114**, 536 (2021).
12. K.L. Stankevich, *JETP Lett.* **116**, 167 (2022).
13. V.V. Demidov, N.V. Andreev, T.A. Shaikhulov, and G.A. Ovsyannikov, *J. Magn. Magn. Mater.* **497**, 165979 (2020).
14. A.P. Ramirez, *J. Phys. Condens. Matter* **9**, 8171 (1997).
15. J.M.D. Coey, M. Viret, and S. von Molnar, *Adv. Phys.* **48**, 167 (1999).
16. H. Wang, C. Du, P.C. Hammel, and F. Yang, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 097202 (2014).
17. C. Hahn, G. de Loubens, V.V. Naletov, J.B. Youssef, O. Klein, and M. Viret, *Europhys. Lett.* **108**, 57005 (2014).
18. R. Khyumyn, I. Lisenkov, V. Tiberkevich, A. Slavin, and B. Ivanov, *Phys. Rev. B.* **108**, 224421 (2016).
19. A.L. Khoroshilov, A.V. Bogach, S.V. Demishev, K.M. Krasikov, S.E. Polovets, N.Yu. Shitsevalova, V.B. Filipov, and N.E. Sluchanko, *JETP Lett.* **115**, 130 (2022).
20. Y. Zhang, J. Chen, J. Zhang, and H. Yu, *Appl. Phys. Rev.* **9**, 041312 (2022).
21. R. Søndena, P. Ravindran, S. Stølen, T. Grande, and M. Hanfland, *Phys. Rev.* **74**, 144102 (2006).
22. D.M. Nalecz, R. Bujakiewicz-Koronska, and R.J. Radwanski, *Ferroelectrics* **483**, 86 (2015).
23. L. Maurel, N. Marcano, T. Prokscha, E. Langenberg, J. Blasco, R. Guzman, A. Suter, C. Magen, L. Morellon, M.R. Ibarra, J.A. Pardo, and P.A. Algarabel, *Phys. Rev. B* **92**, 024419 (2015).
24. J.H. Lee and K.M. Rabe, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 207204 (2010).
25. T.A. Shaikhulov, G.A. Ovsyannikov, V.V. Demidov, and N.V. Andreev, *JETP* **129**, 112 (2019).
26. T.M. Vasilevskaya and D.I. Sementsov, *Phys. Met. Metallogr.* **108**, 339 (2009).
27. V.V. Demidov and T.A. Shaikhulov, *J. Magn. Magn. Mater.* **566**, 170299 (2023).
28. A. Tebano, C. Aruta, S. Sanna, P.G. Medaglia, G. Balestrino, A.A. Sidorenko, R. De Renzi, G. Ghiringhelli, L. Braicovich, V. Bisogni, and N.B. Brookes, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 137401 (2008).
29. D. Yi, C.L. Flint, P.P. Balakrishnan, K. Mahalingam, B. Urwin, A. Vailionis, A.T. N'Diaye, P. Shafer, E. Arenholz, Y. Choi, K.H. Stone, J.-H. Chu, B.M. Howe, J. Liu, I.R. Fisher, and Y. Suzuki, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 077201 (2017).
30. F. Li, C. Song, Y.Y. Wang, B. Cui, H.J. Mao, J.J. Peng, S.N. Li, G.Y. Wang, and F. Pan, *Sci. Rep.* **5**, 16187 (2015).
31. J. Nogues and K.I. Schuller, *J. Magn. Magn. Mater.* **192**, 203 (1999).