

Переход в магнитное неколлинеарное спин-флоп состояние в сверхрешетке Fe/Pd/Gd/Pd

Н. О. Антропов^{+*1)}, Ю. Н. Хайдуков^{×°}, Е. А. Кравцов^{+*}, М. В. Макарова⁺, В. В. Проглядо⁺, В. В. Устинов^{+*}

⁺Институт физики металлов им. М. Н. Михеева Уральского отделения 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

Поступила в редакцию 29 декабря 2018 г.

После переработки 18 января 2019 г.

Принята к публикации 23 января 2019 г.

В этой работе представлено исследование влияния прослойки Pd на магнитные свойства гетероструктур Gd/Fe. Многослойная структура [Fe(3.5 нм)/Pd(1.2 нм)/Gd(5.0 нм)/Pd(1.2 нм)]₁₂ была выращена методом высоковакуумного распыления. Используя рефлектометрию поляризованных нейтронов, мы наблюдали значительное увеличение интенсивности рассеяния нейтронов с переворотом спина в магнитном поле выше 1.5 кЭ. Комбинированный анализ данных магнитометрии и рефлектометрии поляризованных нейтронов позволил нам выяснить, что наблюдаемое увеличение рассеяния с переворотом спина объясняется спин-флоп переходом. Несмотря на то, что спин-флоп переход уже был обнаружен в системах Fe/Gd, в нашем случае использование Pd позволяет уменьшить магнитное поле перехода, что позволит применить системы Fe/Pd/Gd в различных приложениях спинтроники.

DOI: 10.1134/S0370274X19060122

Магнитные неколлинеарные (НК) структуры – интересные объекты в различных областях спинтроники как элементы MRAM, основанной на использовании спинового вращательного момента [1] или как источники триплетной сверхпроводимости в гетероструктурах ферромагнетик/сверхпроводник [2–4]. Редкоземельные (РЗ) материалы и сверхрешетки на их основе – одни из лучших кандидатов для создания НК структур в силу ряда причин. Прежде всего, неколлинеарные конфигурации, такие как геликоиды или циклоиды, уже существуют во многих объемных РЗ материалах, таких как гольмий и диспрозий. Можно существенно расширить многообразие магнитных фаз с помощью создания гетероструктур, содержащих различные РЗ металлы [5–7]. Другой интересный класс материалов – гетероструктуры на основе редкоземельных и переходных металлов (ПМ). Здесь наблюдаются различные типы эффектов близости ферромагнетик/ферромагнетик [8–13] и ферромагнетик/сверхпроводник [14–16].

Особый интерес представляет формирование неколлинеарного упорядочения в гетероструктурах Fe/Gd. Системы Fe/Gd изучаются уже многие

годы [8–11, 17–19]. Известно, что из-за обменного взаимодействия магнитные моменты железа и гадолиния упорядочиваются антипараллельно. При низкой температуре выше определенного значения магнитного поля H_{SFF} возможен переход в существенно неколлинеарную спин-флоп фазу (СФФ). Интересно отметить, что в то время, как большинство неколлинеарных состояний разрушается под воздействием приложенного магнитного поля, обусловленное спин-флопом НК состояние возникает при приложении внешнего магнитного поля. Однако недостаток систем Fe/Gd заключается в том, что поле H_{SFF} составляет порядка Тесла и более, делая их трудными для технической реализации. Чтобы уменьшить это поле, можно использовать немагнитную прослойку. Было предпринято несколько попыток с различными прослойками, такими как Cr [20, 21], Pt [22] или Si [23], однако спин-флоп фаза либо не наблюдалась, либо уменьшение магнитного поля было незначительным. В настоящей работе мы демонстрируем, каким образом при использовании прослойки Pd, H_{SFF} поле может быть в значительной степени понижено до области $H_{\text{SFF}} \sim \text{кЭ}$. Сверхрешетка номинальной композиции [Fe(3.5 нм)/Pd(1.2 нм)/Gd(5.0 нм)/Pd(1.2 нм)]₁₂ была

¹⁾e-mail: nikolayantropovekb@gmail.com

выращена методом высоковакуумного магнетронного распыления на монокристаллической подложке Si(001) при комнатной температуре. Рост начинался с буферного слоя Cr (5 нм) с последующим напылением Fe и заканчивая Pd. Защитный слой Cr (3 нм) нанесен на верхний слой Pd для защиты структуры от окисления. Основное давление в камере составляло 10^{-8} Торр. Скорости роста поддерживались $1 \text{ \AA}/\text{с}$ для Gd, $0.5 \text{ \AA}/\text{с}$ для Fe, $1.5 \text{ \AA}/\text{с}$ для Pd, и $1 \text{ \AA}/\text{с}$ для Cr.

Структурная характеристика слоев и качества межслойных границ проводилась с помощью рентгеновской рефлектометрии (RR) на дифрактометре PANalytical Empyrean Series 2. В эксперименте использовалось $\text{Co K}\alpha$ излучение в геометрии параллельного пучка. Параллельно падающий пучок формировался W/Si параболическим зеркалом. Высота пучка, ограниченного щелью, составляла 0.08 мм. На вторичном пучке использовался плоскопараллельный коллиматор с экваториальной апертурой 0.27° в комбинации с плоским графитовым монокроматором и коллимирующей щелью с экваториальной апертурой 0.1 мм. На рисунке 1 представлена измеренная рефлектометрическая кривая. Мы наблюдали 15 порядков брэгговских пиков от сверхрешетки, что говорит о высоком качестве нашей системы.

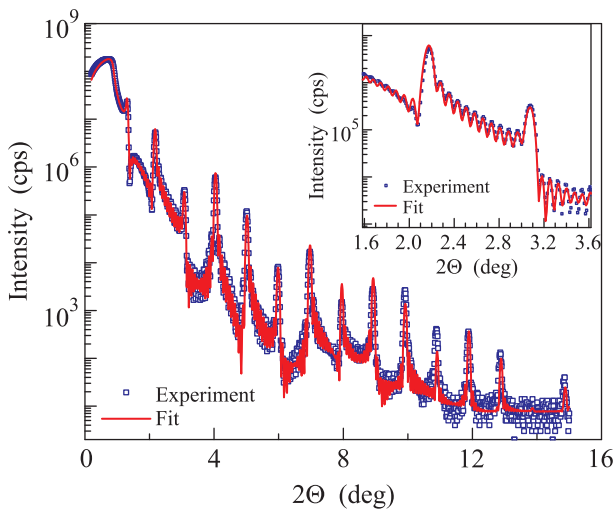


Рис. 1. (Цветной онлайн) Экспериментальные данные (точки) и модель (красная линия) рентгеновской рефлектометрии

Обработка (фитирование) рефлектограмм проводилось с использованием коммерческой программы PANalytical X'Pert Reflectivity. При обработке мы рассматривали модель из двенадцати одинаковых четырехслойных блоков [Fe/Pd/Gd/Pd]. Экспе-

риментальная кривая хорошо описывается модельной структурой с толщинами, отличающимися от номинальных значений не более 5%, и среднеквадратичной шероховатостью межслойных границ порядка одного монослоя.

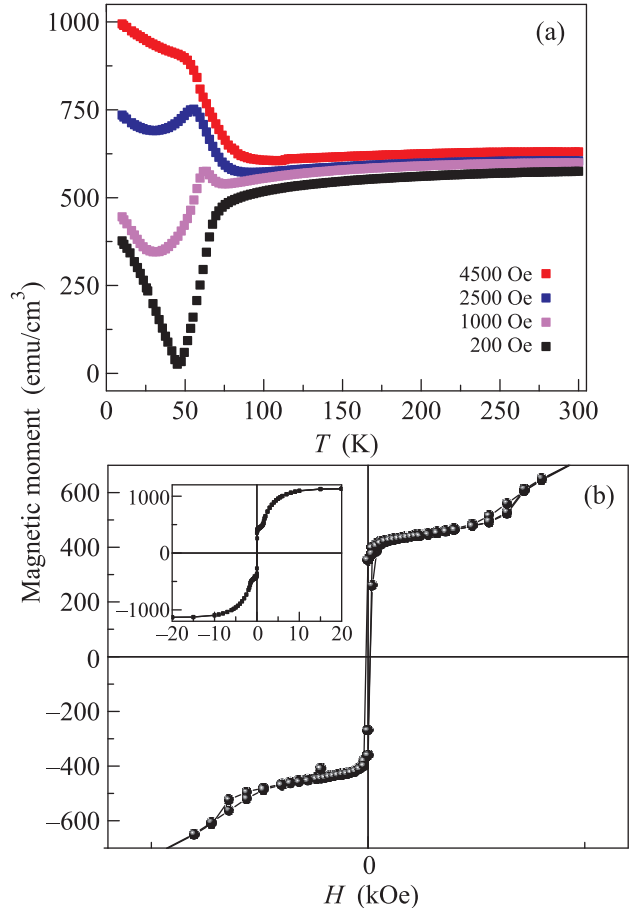


Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Температурная зависимость магнитного момента на единицу объема. (b) – Экспериментальная петля гистерезиса при $T = 10 \text{ K}$. На вставке рис. 2b показана кривая в увеличенном масштабе

Магнитометрические измерения были выполнены на сверхпроводящем квантовом интерферометре (СКВИД) в Институте физики металлов. В эксперименте магнитное поле H было приложено в плоскости образца. На рисунке 2 показаны температурные зависимости магнитных моментов, измеренные при различных магнитных полях. Выше $T \sim 75 \text{ K}$ магнитный момент слабо зависит от температуры и магнитного поля и составляет $m \approx 600 \text{ Гаусс}$. Ниже 75 K температурная зависимость магнитного момента становится немонотонной и сильно зависит от приложенного поля. Также стоит отметить, что при $T \approx 48 \text{ K}$ возникает точка компенсации, аналогич-

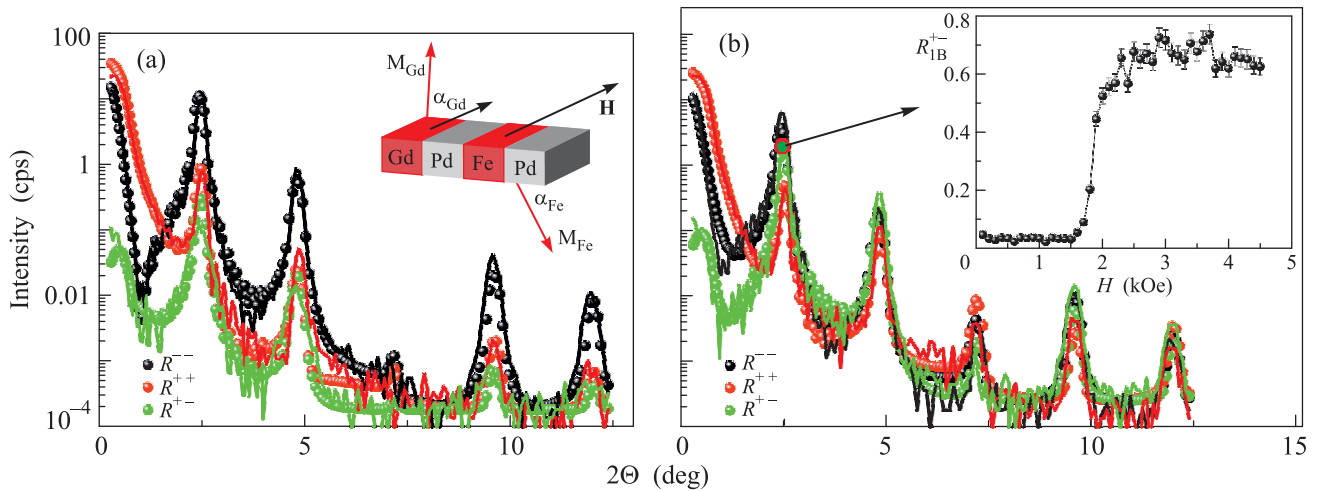


Рис. 3. (Цветной онлайн) Нейтронные рефлектометрические кривые, измеренные при $T = 10$ К в магнитных полях $H = 100$ Э (a) и $H = 2.5$ кЭ (b). На вставке рис. 3a показаны абсолютные значения и углы наклона векторов намагниченности слоев Fe и Gd, полученные при обработке. На вставке рис. 3b показана полевая зависимость ($+ -$) канала на первом брэгговском пике

но наблюдаемой в похожих системах Fe/Gd [11] и Fe/Cr/Gd [20, 21]. Температурная зависимость, приведенная на рис. 2a, демонстрирует сложное ферромагнитное упорядочение магнитных моментов Fe и Gd, по-видимому, направленных антипараллельно друг другу. Скорее всего, наличие сильного обменного взаимодействия в сверхрешетках Fe/Pd/Gd через толстую прослойку Pd в сравнении с Cr обусловлено особенностями Ферми поверхности Pd, а также может быть связано с наличием индуцированного магнитного момента в слоях Pd [24]. Можно полагать, что значительное уменьшение T_C Gd возникает из-за размерных эффектов, хорошо известных для тонких магнитных пленок. На рисунке 2b приведена петля гистерезиса, измеренная при $T = 10$ К. Можно заметить типичный для СФФ переход изгиб при $H \approx 1.5$ кЭ.

Для того, чтобы определить зависимости векторных профилей намагниченности от глубины до и после перехода, мы выполнили РПН эксперименты во внешних магнитных полях $H \approx 100$ Э (рис. 3a) и $H \approx 2.5$ кЭ (рис. 3b). Эксперимент был проведен на угловом дисперсионном рефлектометре NREX (длина волны нейтронов 4.3 Å) исследовательского реактора FRM-II (Гархинг, Германия). Внешнее магнитное поле H прикладывалось в плоскости образца нормально к плоскости рассеяния. Используя трансмиссионные поляризатор и анализатор с эффективностью $P_P = 99.99\%$ и $P_A = 99.1\%$, соответственно, было измерено рассеяние без переворота спина нейтронов (НСФ – *Non spin flip*) R^{++} и R^{--} и с переворотом спина (СФ – *Spin flip*) R^{+-} и R^{-+} . Здесь верх-

ний индекс обозначает проекцию спина нейтрона на магнитное поле H до и после рассеяния. Ниже мы показываем только R^{+-} кривую, поскольку во всех измеренных данных мы наблюдали $R^{+-} \approx R^{-+}$.

Рефлектометрические кривые при $H = 100$ Э приведены на рис. 3a. Как можно заметить, здесь 5 порядков брэгговского отражения с сильным расщеплением НСФ каналов, это доказывает наличие коллинеарной компоненты намагниченности, направленной параллельно H . Одновременно мы наблюдали небольшой сигнал СФ, что говорит о наличии неколлинеарной компоненты намагниченности. Экспериментальные кривые были обработаны с использованием программы GenX. При обработке мы использовали толщины и среднеквадратичные шероховатости, полученные из РР и варьировали только абсолютные значения намагниченности ($M_{Gd,Fe}$) и угол наклона ($\alpha_{Gd,Fe}$) вектора намагниченности относительно \mathbf{H} (см. вставку на рис. 3a). Наилучшее соответствие между моделью и экспериментом было получено для $M_{Gd} = 1.46 \pm 0.1$ кГс, $M_{Fe} = 1.1 \pm 0.1$ кГс, $\alpha_{Gd} = 20 \pm 10^\circ$ и $\alpha_{Fe} = 165 \pm 5^\circ$. Таким образом, при $H = 100$ Э магнитные моменты M_{Gd} и M_{Fe} упорядочены почти антипараллельно, подтверждая таким образом наличие антиферромагнитного обменного взаимодействия магнитных моментов Fe и Gd через прослойку Pd.

Когда магнитное поле достигает $H = 2.5$ кЭ, мы наблюдаем сильное увеличение интенсивности СФ рассеяния, что подтверждает увеличение неколлинеарности системы. На вставке на рис. 3b показана полевая зависимость интенсивности рассеяния с пе-

реворотом спина на первом брэгговском пике, R_{1B}^{+-} , причем наблюдается фазовый переход выше 1.5 кЭ в согласии со СКВИД петлей гистерезиса. Мы смогли описать этот переход с помощью поворота векторов намагниченности слоев Gd и Fe на углы $\alpha_{Gd} = 60 \pm 10^\circ$ и $\alpha_{Fe} = 93 \pm 5^\circ$.

Таким образом, согласно нашим результатам, при $H < 1.5$ кЭ вектор M_{Fe} (M_{Gd}) параллелен (антипараллелен) внешнему полю. Такая конфигурация обусловлена зеемановским взаимодействием, которое стремится упорядочить разность магнитных моментов слоев Fe и Gd вдоль внешнего поля. Так как магнитный момент (произведение намагниченности на объем слоя) Fe меньше, его вектор намагниченности поворачивается при малом поле антипараллельно внешнему полю. Выше 1.5 кЭ система испытывает переход в существенно неколлинеарное магнитное состояние.

Подводя итог, в данной работе мы показали, каким образом использование прослойки Pd(1.2 нм) позволяет уменьшить поле спин-флоп перехода до $H_{SFP} = 1.5$ кЭ в структуре [Fe(3.5 нм)/Pd(1.2 нм)/Gd(5.0 нм)/Pd(1.2 нм)]₁₂. Используя рефлектометрию поляризованных нейтронов, мы наблюдали 20-кратное увеличение рассеяния нейтронов с перевертыванием спина при температуре на 10 К выше H_{SFP} , что прямо указывает на переход в существенно неколлинеарное магнитное состояние. Наши исследования могут быть полезны в низкотемпературных приложениях спинтроники с неколлинеарными магнитными структурами.

Эта работа частично основана на экспериментах, выполненных на инструменте NREX на реакторе FRM2 в Центре Хайнца Майера-Лейбница (MLZ – *Maier-Leibnitz Zentrum*) (Гархинг, Германия), эксплуатируемом Институтом Макса Планка (Штутгарт, Германия), при поддержке Немецкого научно-исследовательского общества (DFG – *Deutsche Forschungsgemeinschaft*) коллективного исследовательского центра TRR 80.

Рентгеновская дифракция и СКВИД измерения выполнены в центре коллективного пользования Института физики металлов Уральского отделения Российской академии наук.

Результаты получены при поддержке Министерства науки России (проект “Спин” # АААА-А18-118020290104-2) и частичной поддержки Российского Фонда Фундаментальных Исследований (проект # 18-32-00197 и 19-02-00674).

1. D. Ralph and M. Stiles, *J. Magn. Magn. Mater.* **320**, 1190 (2008).

2. M. Eschrig, *Phys. Today* **64**, 43 (2011).
3. C. Klose, T. S. Khaire, Y. Wang, W. P. Pratt, N. O. Birge, B. J. McMorran, T. P. Ginley, J. A. Borchers, B. J. Kirby, B. B. Maranville, and J. Unguris, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 127002 (2012).
4. D. Lenk, R. Morari, V. I. Zdravkov, A. Ullrich, Y. Khaydukov, G. Obermeier, C. Müller, A. S. Sidorenko, H.-A. K. von Nidda, S. Horn, L. R. Tagirov, and R. Tidecks, *Phys. Rev. B* **96**, 184521 (2017).
5. C. Majkrzak, J. Kwo, M. Hong, Y. Yafet, D. Gibbs, C. Chien, and J. Bohr, *Adv. Phys.* **40**, 99 (1991).
6. S. V. Grigoriev, Y. O. Chetverikov, D. Lott, and A. Schreyer, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 197203 (2008).
7. N. O. Antropov, E. A. Kravtsov, Y. N. Khaidukov, M. V. Ryabukhina, V. V. Proglyado, O. Weschke, and V. V. Ustinov, *JETP Lett.* **108**, 341 (2018).
8. N. Ishimatsu, H. Hashizume, S. Hamada, N. Hosoito, C. S. Nelson, C. T. Venkataraman, G. Srajer, and J. C. Lang, *Phys. Rev. B* **60**, 9596 (1999).
9. D. Haskel, G. Srajer, J. C. Lang, J. Pollmann, C. S. Nelson, J. S. Jiang, and S. D. Bader, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 207201 (2001).
10. Y. Choi, D. Haskel, R. E. Camley, D. R. Lee, J. C. Lang, G. Srajer, J. S. Jiang, and S. D. Bader, *Phys. Rev. B* **70**, 134420 (2004).
11. E. Kravtsov, D. Haskel, S. G. E. te Velthuis, J. S. Jiang, and B. J. Kirby, *Phys. Rev. B* **79**, 134438 (2009).
12. P. N. Lapa, J. Ding, J. E. Pearson, V. Novosad, J. S. Jiang, and A. Hoffmann, *Phys. Rev. B* **96**, 024418 (2017).
13. T. D. C. Higgs, S. Bonetti, H. Ohldag, N. Banerjee, X. L. Wang, A. J. Rosenberg, Z. Cai, J. H. Zhao, K. A. Moler, and J. W. A. Robinson, *Sci. Rep.* **6**, 30092 (2016).
14. J. W. A. Robinson, J. D. S. Witt, and M. G. Blamire, *Science* **329**, 59 (2010).
15. Y. Gu, J. W. A. Robinson, M. Bianchetti, N. A. Stelmashenko, D. Astill, F. M. Grosche, J. L. MacManus-Driscoll, and M. G. Blamire, *APL Materials* **2**, 046103 (2014).
16. Y. N. Khaydukov, A. S. Vasenko, E. A. Kravtsov, V. V. Proglyado, V. D. Zhaketov, A. Csik, Y. V. Nikitenko, A. V. Petrenko, T. Keller, A. A. Golubov, M. Y. Kupriyanov, V. V. Ustinov, V. L. Aksenov, and B. Keimer, *Phys. Rev. B* **97**, 144511 (2018).
17. K. Takanashi, Y. Kamiguchi, H. Fujimori, and M. Motokawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **61**, 3721 (1992).
18. S. A. Montoya, S. Couture, J. J. Chess, J. C. T. Lee, N. Kent, D. Henze, S. K. Sinha, M.-Y. Im, S. D. Kevan, P. Fischer, B. J. McMorran, V. Lomakin, S. Roy, and E. E. Fullerton, *Phys. Rev. B* **95**, 224415 (2017).
19. S. A. Montoya, S. Couture, J. J. Chess, J. C. T. Lee, N. Kent, M.-Y. Im, S. D. Kevan, P. Fischer, B. J. McMorran, S. Roy, V. Lomakin, and E. E. Fullerton, *Phys. Rev. B* **95**, 224405 (2017).

20. A. B. Drovosekov, N. M. Kreines, A. O. Savitsky, E. A. Kravtsov, D. V. Blagodatkov, M. V. Ryabukhina, M. A. Milyaev, V. V. Ustinov, E. M. Pashaev, I. A. Subbotin, and G. V. Prutskov, *JETP* **120**, 1041 (2015).
21. A. B. Drovosekov, M. V. Ryabukhina, D. I. Kholin, N. M. Kreines, E. A. Manuilovich, A. O. Savitsky, E. A. Kravtsov, V. V. Proglyado, V. V. Ustinov, T. Keller, Y. N. Khaydukov, Y. Choi, and D. Haskel, *JETP* **127**, 742 (2018).
22. K. Takahashi, H. Kurokawa, and H. Fujimori, *Appl. Phys. Lett.* **63**, 1585 (1993).
23. D. N. Merenkov, A. B. Chizhik, S. L. Gnatchenko, M. Baran, R. Szymczak, V. O. Vas'kovskiy, and A. V. Svalov, *Low Temp. Phys.* **27**, 137 (2001).
24. J. Vogel, A. Fontaine, V. Cros, F. Petroff, J.-P. Kappler, G. Krill, A. Rogalev, and J. Goulon, *Phys. Rev. B* **55**, 3663 (1997).