

УДК 538.955

ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕЛИМАГНЕТИЗМА В ТОНКИХ ПЛЕНКАХ Dy И Ho МЕТОДОМ НЕЙТРОННОЙ РЕФЛЕКТОМЕТРИИ

© 2021 г. Д. И. Девятериков^{а, *}, Е. А. Кравцов^{а, б, **}, В. В. Проглядо^а,
В. Д. Жакетов^с, Ю. В. Никитенко^с

^аИнститут физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, 620108 Россия

^бУральский федеральный университет, Екатеринбург, 620002 Россия

^сОбъединенный институт ядерных исследований, Дубна, 141980 Россия

*e-mail: devidor@yandex.ru

**e-mail: kravtsov@imp.uran.ru

Поступила в редакцию 22.10.2020 г.

После доработки 20.12.2020 г.

Принята к публикации 24.12.2020 г.

Представлены результаты исследования тонких пленок редкоземельных гелимагнетиков (РЗМ) Dy и Ho методом рефлектометрии поляризованных нейтронов. Было показано, что при росте методом магнетронного напыления редкоземельных структур на подложках сапфира с буферным слоем Nb [1 102] Al₂O₃ || [110]Nb || [0001] R происходит полная релаксация кристаллических решеток Nb и редкоземельной пленки. Было установлено, что ряд магнитных фазовых переходов, характерных для объемных Dy и Ho, не наблюдается в тонких пленках [0001] R толщиной 200 нм или наблюдается в измененном виде. Из данных рефлектометрии поляризованных нейтронов и измерений температурной зависимости намагниченности в плоскости образца были определены отличия в температурах Нееля и Кюри для тонких пленок РЗМ по сравнению с объемными.

Ключевые слова: редкоземельные металлы, диспрозий, гольмий, нейтронная рефлектометрия, магнитное упорядочение.

DOI: 10.31857/S1028096021060054

ВВЕДЕНИЕ

Изучены магнитные и структурные свойства тонких пленок Dy и Ho тяжелых редкоземельных металлов (РЗМ) со сложной магнитной структурой. Объемные Dy и Ho кристаллизуются в гексагонально плотно упакованную (ГПУ) структуру с параметрами кристаллической решетки $a = 0.35903$ нм, $c = 0.6475$ нм для Dy и $a = 0.35773$ нм, $c = 0.56158$ нм для Ho [1, 2]. Одной из наиболее интересных особенностей этих металлов является формирование длиннопериодической геликоидальной магнитной структуры в диапазоне температур от $T_C = 85$ К до $T_N = 178$ К для объемного Dy и при температурах, меньших $T_N = 131.4$ К, для объемного Ho. Геликоидально упорядоченные магнитные моменты РЗМ лежат в базисной плоскости ГПУ решетки, поворачиваясь на некоторый фиксированный угол α с каждой трансляцией вдоль оси c элементарной ячейки. Период геликоиды (т.е. расстояние вдоль оси c , после которого магнитный момент совершит полный оборот), как правило, несоизмерим с параметром решетки РЗМ. При приложении внешнего маг-

нитного поля в базисной плоскости, геликоидальное магнитное упорядочение может трансформироваться в геликоидально-веерное, веерное или ферромагнитное. Магнитные моменты Ho при температурах ниже 19 К частично выходят из базисной плоскости, образуя соизмеримую конусообразную магнитную структуру [3–7].

В свою очередь, в тонких пленках и многослойных наноструктурах Dy и Ho могут проявляться интересные особенности, не наблюдаемые в объемных материалах. Например, наблюдаются такие эффекты, как уменьшение температуры Нееля в тонких пленках Ho при уменьшении толщины слоя [8], управляемый сдвиг температуры Кюри в пленках Dy под действием эпитаксиальных напряжений [9] и подавление магнитных фазовых переходов из геликоидальной в ферромагнитную фазу в сверхрешетках Dy/Y [10] и Dy/Gd [11]. Необходимо упомянуть также феномен образования когерентной геликоидальной структуры в сверхрешетках Ho/Y [12] и осциллирующее межслойное магнитное упорядочение в сверхрешетках Gd/Y [13]. Изучение природы формирова-

ния и особенностей появления подобных эффектов в РЗМ-пленках представляет как фундаментальный, так и прикладной интерес.

Одним из наиболее удобных, но редко используемых методов исследования тонких пленок и сверхрешеток на основе РЗМ, является рефлектометрия поляризованных нейтронов (РПН).

Целью настоящей работы является применение РПН для исследования магнитной структуры тонких пленок Ду и Но, в частности, определение температур магнитных фазовых переходов в этих пленках и изучение температурных и полевых зависимостей периода геликоидального магнитного упорядочения в них.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Редкоземельные пленки Ду и Но были выращены на монокристаллических подложках [1 $\bar{1}02$] Al_2O_3 методом высоковакуумного магнетронного распыления при типичных скоростях роста около 1 монослоя в секунду, что способствует кинетической моде роста наноструктур. Рост образцов проводился на установке высоковакуумного магнетронного распыления ULVAC-MPS-4000-C6. На подложку при температуре 435°C был нанесен буферный слой Nb толщиной 40 нм, далее температура подложки была снижена до 150°C, и на буферном слое был выращен слой либо Ду, либо Но толщиной 200 нм. Для защиты от окисления (после охлаждения структуры в ростовой камере до комнатной температуры) был нанесен защитный слой V толщиной 15 нм.

Структурная характеристика образцов проводилась на лабораторном дифрактометре Eemugean в геометрии $\theta-2\theta$, с использованием CoK_{α} -излучения с энергией 6.929 кэВ в центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН. При этом исследовалась кристаллическая структура пленок вдоль нормали к поверхности пленки.

Измерения величины намагниченности от температуры выполнены на сквид-магнетометре Quantum Design (центр коллективного пользования ИФМ УрО РАН) в температурном диапазоне от 220 до 10 К и в магнитном поле 80 кА/м, приложенном в базисной плоскости.

Нейтронные измерения были выполнены на времяпролетном рефлектометре РЕМУР, функционирующем на базе импульсного быстрого реактора ИБР-2 в лаборатории нейтронной физики ОИЯИ. Спектры снимались на двух образцах с приложенным в базисной плоскости внешним полем напряженность 80 кА/м при различных температурах в диапазоне от 220 до 1.5 К. Регистрация спектров осуществлялась при двух поляризациях пучка нейтронов, далее называемых "положительной" и "отрицательной" по ориен-

тации спинов падающего на образец пучка нейтронов, с равным временем экспозиции.

Экспериментальные данные с рефлектометра РЕМУР были нормированы на интенсивность прямого пучка, после чего преобразованы из инструментальной системы координат в систему координат обратного пространства с помощью ПО Överlåtaren [14] и нормированы на время.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1а, 1б приведены измеренные в зеркальной геометрии $\theta-2\theta$ рентгеновские дифрактограммы для пленки Ду и Но, на которых отмечены наблюдаемые рефлексы. Структурная характеристика показала наличие в обеих пленках РЗМ доминирующей текстуры (0002) вдоль нормали к поверхности, что является результатом, отличающимся от полученных ранее для пленок Ду и Но, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии [15]. Аналогичная текстура была обнаружена нами ранее при росте пленок толщиной 20 нм на подложках [1 $\bar{1}02$] Al_2O_3 [16], но тогда она была менее выраженной, также присутствовали рефлексы, соответствующие иным кристаллографическим направлениям.

Наличие текстуры (0002) в пленках РЗМ вдоль нормали к поверхности образца является необходимым условием формирования геликоидального магнитного упорядочения с волновым вектором геликоида, также направленным по нормали к поверхности. Наличие такого геликоидального магнитного упорядочения приводит к появлению на нейтронных дифракционных спектрах спутанных рефлексов магнитного происхождения вблизи разрешенных структурных брегговских рефлексов (000L). Такие спутанные рефлексы возникают также вблизи положения (0000), а рефлекс (0000)⁺ может быть эффективно детектирован с помощью рефлектометрии поляризованных нейтронов. Положение спутанного рефлекса на рефлектометрической кривой определяется периодом геликоида, а его интенсивность может служить параметром порядка, характеризующим геликоидальное упорядочение и его изменение с температурой и магнитным полем. Таким образом, нейтронные рефлектометрические измерения обеспечивают необходимую информацию для построения магнитной фазовой диаграммы тонких пленок Ду и Но.

На рис. 2а, 2б приведены спектры нейтронной рефлектометрии в порядке возрастания температуры образца. Заметная на всех спектрах вертикальная линия при нулевой горизонтальной проекции вектора рассеяния соответствует зеркально отраженному пучку. Горизонтально расположенный рефлекс различающейся интенсивности, присутствующий на некоторых спектрах как на

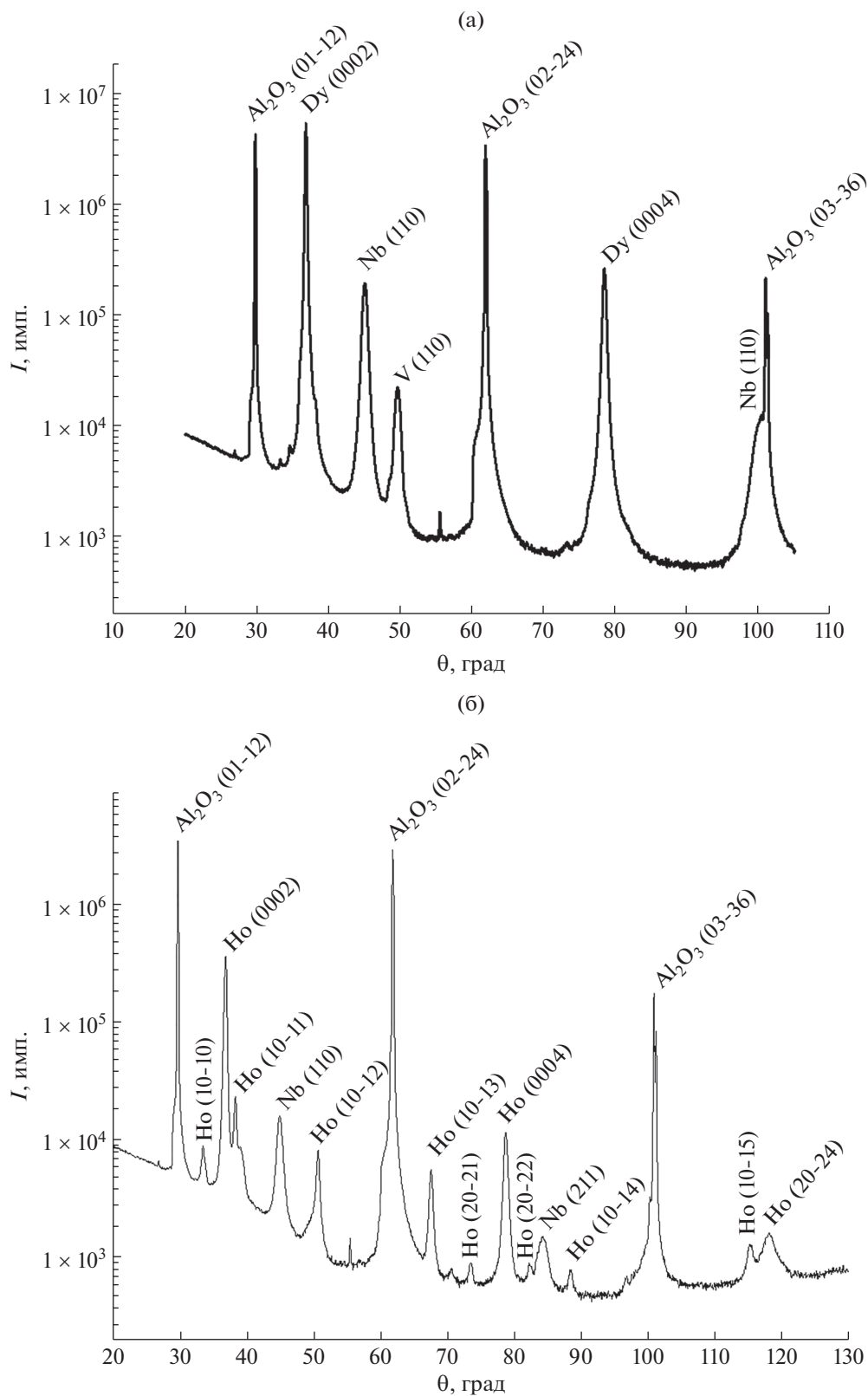


Рис. 1. Рентгеновские дифрактограммы для пленок Dy (а) и Ho (б).

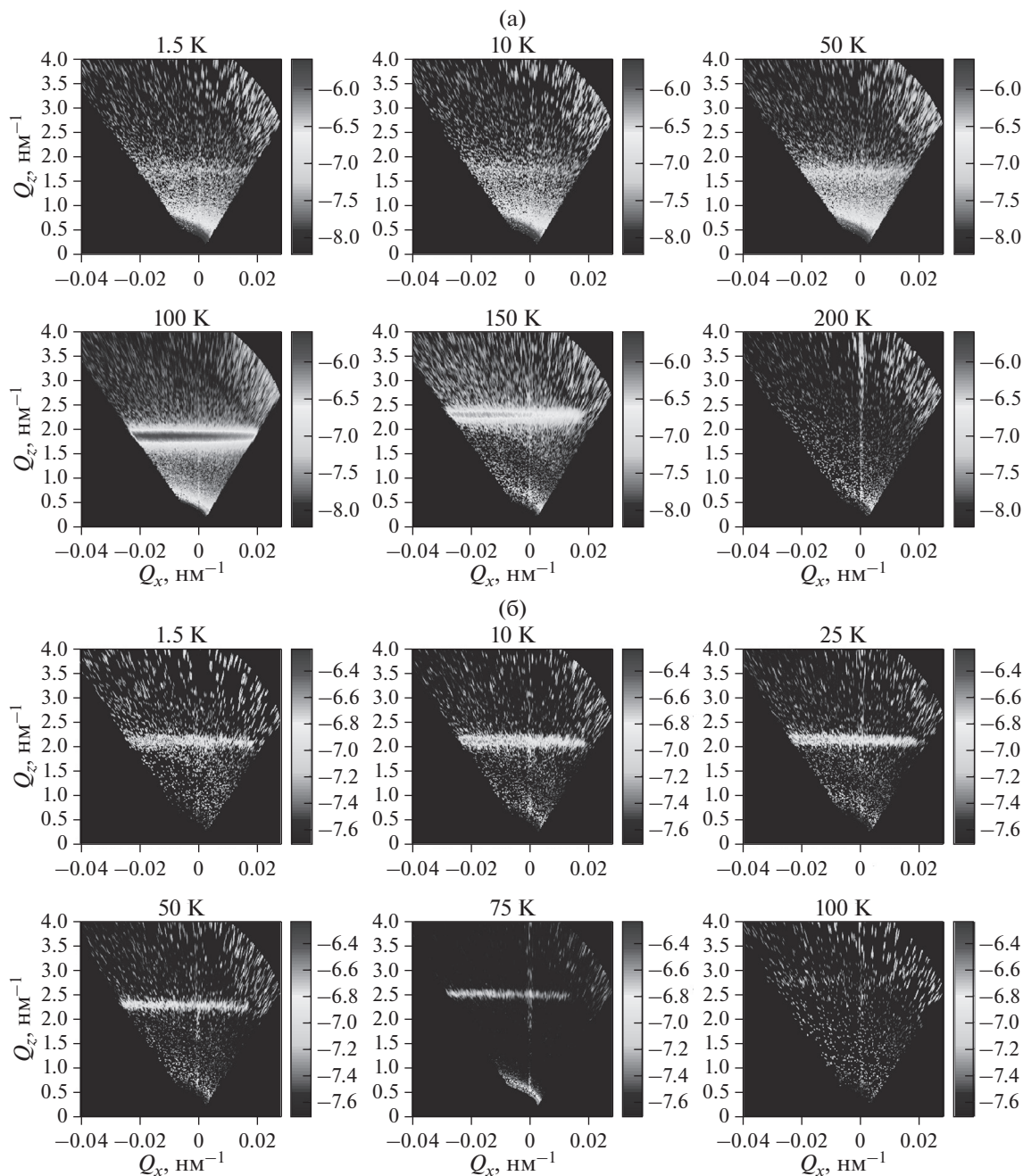


Рис. 2. Спектры нейтронной рефлектометрии для пленок Dy (а) и Ho (б).

рис. 2а, так и на рис. 2б – спутниковый рефлекс от геликоидов.

Численно определить положение и интенсивность магнитного спутникового рефлекса возможно, построив сечения спектров нейтронной рефлектометрии в области зеркального отражения (рис. 3а, 3б). Анализ рис. 3а позволяет установить важные особенности магнитной структуры тонкой пленки Dy. Отсутствие магнитного спутникового рефлекса при температуре 200 К и его

появление при 150 К позволяет установить, что температура Нееля исследуемого образца находится в этом температурном диапазоне, что согласуется с данными по объемному диспрозию ($T_{\text{Neel}} = 181 \text{ K}$) [1]. При этом в температурном диапазоне 1.5–100 К наблюдается резкое уменьшение интенсивности магнитного спутникового рефлекса с понижением температуры, что свидетельствует о частичном переходе диспрозия в ферромагнитное состояние с понижением температуры. В объемном диспрозии магнитный фазо-

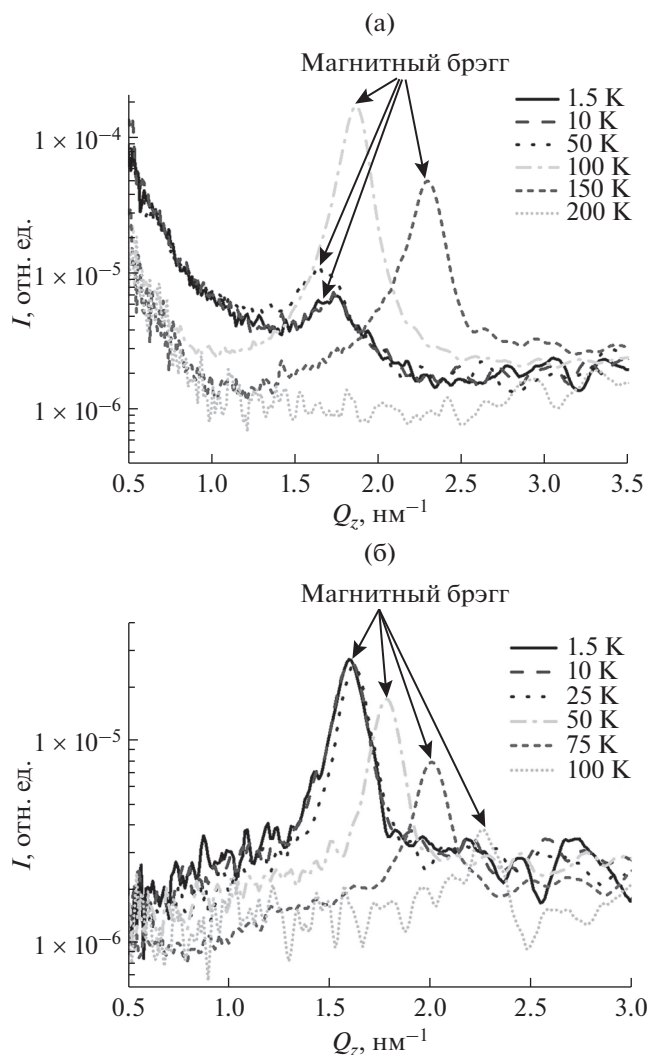


Рис. 3. Сечения спектров нейтронной рефлектометрии пленок Dy (а) и Ho (б) в области зеркального отражения.

вый переход АФМ → ФМ наблюдается при $T = 81$ К и приводит к полному исчезновению геликоидального магнитного упорядочения [1].

На рис. 4а приведены температурные зависимости интенсивности магнитного спутного рефлекса и периода геликоиды в пленке Dy, а также воспроизведена температурная зависимость периода геликоиды в объемном Dy для сравнения. Увеличение периода геликоиды с понижением температуры в диапазоне (50–150 К) согласуется с поведением геликоида в объемном материале, однако свидетельствует о несколько меньшей температуре Кюри в переходящих в ферромагнитное состояние частях образца. Уменьшение периода геликоиды с понижением температуры в диапазоне 1.5–50 К аналогов в объемном Dy не имеет.

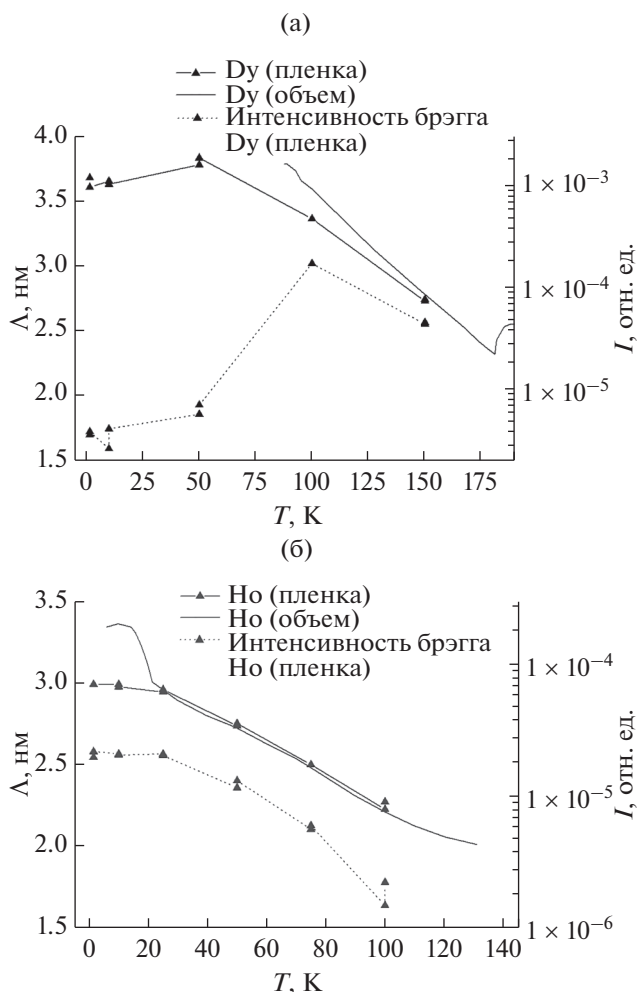


Рис. 4. Температурные зависимости интенсивности магнитного спутного рефлекса и периода геликоиды в пленке Dy в сравнении с периодом геликоиды в объемном Dy (а), в пленке Ho в сравнении с периодом геликоиды в объемном Ho (б).

Для подтверждения предположения о неполном переходе в ферромагнитное состояние пленки Dy и установления температур Кюри и Нееля были проведены измерения температурной зависимости намагниченности при приложении магнитного поля в плоскости образца. Кривые намагниченности для объемного Dy и тонкой пленки представлены на рис. 5а. Температура Нееля в пленке составляет 181 К, температура Кюри – 62 К. Уменьшение намагниченности в пленке Dy практически вдвое связывается с ее структурным несовершенством и геликоидальным упорядочением, сохраняющимся в части вещества даже при низких температурах.

Анализ и обработка результатов измерений пленки Ho производились аналогичным образом. На рис. 3б приведены сечения спектров нейтронной рефлектометрии в области зеркального отра-

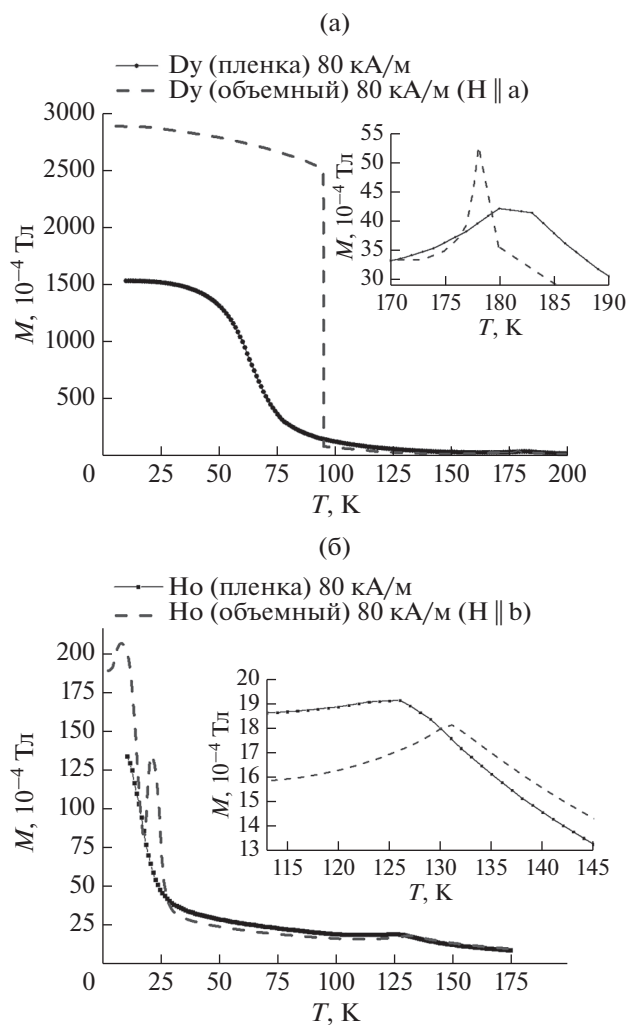


Рис. 5. Кривая намагниченности для объемного Dy и тонкой пленки Dy (а), для объемного Ho и тонкой пленки Ho (б). В объемных материалах магнитное поле прикладывалось вдоль осей легкого намагничивания (а для Dy и б для Ho).

жения. Магнитный сателлитный рефлекс отсутствует вплоть до температуры 100 К, таким образом, температура Нееля пленки лежит между 100 и 120 К, что несколько ниже температуры Нееля в объемном гольмии (131.4 К). При этом в температурном диапазоне 25–100 К интенсивность магнитного сателлитного рефлекса монотонно возрастает, а при температурах ниже 25 К интенсивность рефлекса и его положение практически не меняются.

Изменения периода геликоиды и интенсивности от температуры, а также температурная зависимость периода геликоиды в объемном гольмии отражены на рис. 46. В отличие от пленки Ho в объемном Ho при $T = 21$ К происходит резкое изменение периода геликоиды: он становится пропорциональным параметру решетки гольмия

$\Lambda_{\text{ho}} = c \times 6$. Этот переход к соизмеримому геликоидальному упорядочению в тонкой пленке Ho, по всей видимости, подавлен.

Для подтверждения предположения о подавленном спин–слип переходе в пленке Ho и установления температуры Нееля были проведены измерения температурной зависимости намагниченности в плоскости образца. Кривые намагниченности для объемного гольмия [17] и тонкой пленки представлены на рис. 5б. Температура Нееля в пленке составляет 125 К, что расходится с данными рефлектометрии поляризованных нейтронов, где при 120 К геликоидального магнитного упорядочения не обнаружено. Возможным объяснением является существование некоторого локального магнитного упорядочения, для которого нехарактерно образование длиннопериодических магнитных геликоид.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Показано, что основной текстурой в тонких пленках Dy и Ho, выращенных методом магнетронного распыления на буферном слое (110) Nb и подложке $[1\bar{1}02]Al_2O_3$, является (0002). Таким образом, волновой вектор магнитного геликоида оказывается ориентирован нормально к базисной плоскости образца, и магнитная структура может быть определена методом нейтронной рефлектометрии. При помощи рефлектометрии поляризованных нейтронов были получены температурные зависимости периода геликоиды и интенсивности магнитного сателлитного рефлекса, служащего параметром порядка для описания геликоидальной магнитной структуры. Было установлено, что (как минимум) в части пленки Dy в диапазоне температур от 1.5 до 100 К магнитный фазовый переход AFM \rightarrow FM оказывается подавлен, и геликоид продолжает существовать даже в низких температурах. В пленке Ho было обнаружено подавление магнитного фазового перехода в области низких температур, связанного с образованием о объемных кристаллах соизмеримой геликоидальной магнитной структуры из несоизмеримой.

БЛАГОДАРНОСТИ

Синтез образцов и магнитометрические измерения были выполнены в центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН. Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ (проект № 19-32-90007).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Elliott J.* Magnetic Properties of Rare Earth Metals / N.Y.: Plenum, 1972. 420 с.
2. *Whittaker E.J.W., (R.W.G.)* Wyckoff Crystal Structures / N.Y.: Interscience Publishers 1963. 588 с.

3. Yu J., LeClair P.R., Mankey G.J., Robertson J.L., Crow M.L., Tian W. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. № 1. P. 014404.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.014404>
4. Chernyshov A.S., Tsokol A.O., Tishin A.M., Gschneidner K.A., Pecharsky V.K. // Phys. Rev. B. 2005. V. 71. № 18. P. 184410.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.71.184410>
5. Koeller W.C., Cable J.W., Wilkinson M.K., Wollan E.O. // Phys. Rev. 1966. V. 151. № 6A. P. 414.
<https://doi.org/10.1103/PhysRev.140.A1896>
6. Gibbs D., Moncton D.E., D'Amico K.L., Bohr J., Griener B.H. // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. № 2. P. 234.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.55.234>
7. Cowley R.A., Bates S. // J. Phys. C: Solid State Phys. 1988. V. 21. № 22. P. 4113.
<https://doi.org/10.1088/0022-3719/21/22/024>
8. Weschke E., Ott H., Schierle E., Schüßler-Langeheine C., Vyalikh D. V., Kaindl G., Leiner V., Ay M., Schmitte T., Zabel H., Jensen P.J. // Phys. Rev. Lett. 2004. V. 93. № 15. P. 157204.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.93.157204>
9. Tsui F., Flynn C.P. // Phys. Rev. Lett. 1993. V. 71. № 9. P. 1462.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1462>
10. Erwin R.W., Rhyne J.J., Salamon M.B., Borchers J., Sinha Shantanu DuR., Cunningham J.E., Flynn C.P. // Phys. Rev. B. 1987. V. 35. № 13. P. 6808.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.35.6808>
11. Antropov N.O., Kravtsov E.A., Khaidukov Yu.N., Ryabukhina M.V., Proglyado V.V., Weschke O., Ustinov V.V. // JETP Letters. 2018. V. 108. № 5–6. P. 341.
<https://doi.org/10.1134/S0370274X18170113>
12. Tarnavich V.V., Lott D., Mattauch S., Oleshkevych A., Kapaklis V., Grigoriev S.V. // Phys. Rev. B. 2014. V. 89. № 5. P. 054406.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.89.054406>
13. Kwo J., Gyorgy E.M., McWhan D.B., Hong M., DiSalvo F.J., Vettier C., Bower J.E. // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. № 13. P. 1402.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.55.1402>
14. Adlmann F.A., Palsson G.K., Bilheux J.C., Ankner J.F., Gutfreund P., Kawecki M., Wolff M. // J. Appl. Cryst. 2016. V. 49. P. 2091.
<https://doi.org/10.1107/S1600576716014382>
15. Majkrzak C.F., Kwo J., Yjng M., Yafet Y., Gibbs D., Chen C.L., Bohr J. // Adv. Phys. 1991. V. 40. № 2. P. 99.
<https://doi.org/10.1080/00018739100101482>
16. Девятериков Д.И., Васьковский В.О., Жакетов В.Д., Кравицов Е.А., Макарова М.В., Проглядо В.В., Степанов Е.А., Устинов В.В. // Phys. Met. and Metallogr. 2020. V. 121. № 12. P. 1127.
<https://doi.org/10.1134/S0031918X20120042>
17. Zverev V.I., Tishin A.M., Min Zou, Mudryk Ya., Gschneidner Jr K.A., Pecharsky J.V.K. // Phys.: Condens. Matter. 2015. V. 27. № 14. P. 146002.
<https://doi.org/10.1088/0953-8984/27/14/146002>

Investigation of Helimagnetism in Dy and Ho Thin Films by Neutron Reflectometry

D. I. Devyaterikov^{1, *}, E. A. Kravtsov^{1, 2, **}, V. V. Proglyado¹, V. D. Zhaketov³, Yu. V. Nikitenko³

¹Institute of metal physics UB RAS, Ekaterinburg, 620108 Russia

²Ural Federal University, Ekaterinburg, 620002 Russia

³Frank Laboratory of Neutron Physics, Joint Institute for Nuclear Research, Dubna, 141980 Russia

*e-mail: devidor@yandex.ru

**e-mail: kravtsov@imp.uran.ru

The article presents the results of investigation of thin films of rare-earth helimagnetics (REM) Dy and Ho by polarized neutron reflectometry. It was shown that the growth of rare-earth structures on sapphire substrates with a buffer layer of Nb by magnetron sputtering Al_2O_3 ||[110]Nb|| results in complete relaxation of the NB crystal lattices and the rare-earth film. It was found that a number of magnetic phase transitions characteristic of bulk Dy and Ho are not observed in thin films (200 nm) or are observed in a modified form. Also, from the data of polarized neutron reflectometry and measurements of the temperature dependence of the magnetization in the sample plane, differences in the Neel and Curie temperatures for thin REM films compared to bulk REM were determined.

Keywords: rare earth metals, dysprosium, holmium, neutron reflectometry, magnetic ordering.