

УДК 537.622

СТРУКТУРА И МАГНЕТИЗМ НАНОСИСТЕМ НА ОСНОВЕ СВЕРХРЕШЕТОК Gd/MgO/Fe

© 2022 г. Е. М. Якунина^{а, *}, Е. А. Кравцов^{а, b, **}, Д. И. Девятериков^а, В. В. Проглядо^а

^аИнститут физики металлов УрО РАН, Екатеринбург, 620108 Россия

^bУральский федеральный университет, Екатеринбург, 620075 Россия

*e-mail: eyakuninaart@gmail.com

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

Поступила в редакцию 12.01.2022 г.

После доработки 25.03.2022 г.

Принята к публикации 25.03.2022 г.

Наноструктуры на основе сверхрешеток Gd/MgO/Fe – искусственный ферромагнитный материал, в котором обменное взаимодействие магнитных моментов слоев Fe через промежуточные диэлектрические и редкоземельные слои может приводить к магнитным конфигурациям, не реализующимся в хорошо изученных системах Fe/Cr и Fe/MgO/Fe. В настоящей работе были исследованы особенности структуры и магнитные свойства серии сверхрешеток Nb (20 нм)/[Gd (5 нм)/MgO (t нм)/Fe (5 нм)]_x/Nb (5 нм) с различной толщиной слоев диэлектрика MgO ($t = 0, 0.4, 0.8$ и 1.2 нм). Данные рентгеновской рефлектометрии высокого разрешения подтвердили формирование слоистой структуры сверхрешеток с толщинами слоев, близкими к номинальным, и величиной среднеквадратичной шероховатости границы раздела равной 10% от общей толщины слоя. Вибрационная магнитометрия выявила различие в петлях гистерезиса намагниченности образца без слоя MgO и образцов, содержащих слои MgO разной толщины. Образец без слоев диэлектрика имеет существенно меньшую величину намагниченности насыщения.

Ключевые слова: слоистые магнитные наноструктуры, магнитное упорядочение, эффект гигантского туннельного магнитосопротивления, магнитные многослойные материалы, магнитные сверхрешетки, спин-зависимое рассеяние электронов, обменная связь, редкоземельный металл.

DOI: 10.31857/S1028096022120329

ВВЕДЕНИЕ

Металлическая спинтроника – новейшая ветвь микроэлектроники, предполагающая манипуляцию спином электронов в металлических наноструктурах для записи, хранения и передачи информации. Основные объекты металлической спинтроники – слоистые наноструктуры, образованные чередующимися слоями из ферромагнитных металлов и немагнитного металла или диэлектрика. Наиболее популярным видом диэлектрических прослоек является оксид магния (MgO). Было установлено, что при добавлении прослоек MgO их взаимодействие с атомами металлов создает сложные эффекты, влияющие на формирование магнитных свойств всей структуры [1, 2]. Как показали недавние исследования [3, 4], процессами перемагничивания в ферромагнитных слоях можно управлять, помещая прослойку MgO между металлическими слоями и варьируя ее толщину [5, 6]. Можно ожидать, что расположение MgO относительно различных типов металлических слоев, а также их толщина будут определять

сложные магнитные конфигурации в таких наноструктурах.

Эффект гигантского магнитосопротивления – явление, возникающее в магнитных многослойных материалах на основе переходных металлов, которое представляет большое практическое значение для их применения в качестве элементов устройств спинтроники [7]. Наноструктуры на основе Fe/Cr – это классические системы, в которых проявляется данный эффект [8, 9] за счет спин-зависимого рассеяния электронов и осциллирующего обменного взаимодействия магнитных моментов Fe, разделенных тонкими слоями Cr. Другой технологически важной системой являются наноструктуры Fe/MgO/Fe, в них гигантское туннельное магнитосопротивление возникает за счет спин-зависимого туннелирования электронов через слой диэлектрика MgO [10, 11].

Среди редкоземельных ферромагнитных металлов гадолиний (Gd) является одним из наиболее привлекательных для использования в метал-

лических наноструктурах, благодаря его уникальным магнитным и электрическим свойствам [12]. В нескольких исследованиях [13, 14] упомянуто, что намагниченность на поверхности Gd антиферромагнитно связана с объемной намагниченностью. Кроме того, Gd известен как материал, который демонстрирует большое спин-орбитальное расщепление Рашбы на поверхности [15]. Поскольку вклады на границе раздела сред в туннельное магнитосопротивление значительно сильнее, чем вклады в объеме [16, 17], определение характеристик туннельного магнитосопротивления является одним из наиболее эффективных методов исследования границы раздела магнитных материалов.

Наноструктуры Gd/MgO/Fe – это новая система, в которой межслойная связь магнитных моментов Fe обеспечивается посредством чередования тонких слоев диэлектриков, переходных и редкоземельных металлов [18]. В настоящее время наноструктуры подобного типа изучены слабо. Существует всего несколько публикаций по исследованию систем на основе Gd/MgO/Fe [19, 20]. На данный момент неизвестно, как магнитные моменты Fe будут взаимодействовать через тонкую прослойку MgO со слоями редкоземельного металла Gd, а также какие эффекты могут быть сформированы в результате. Настоящее исследование направлено на создание, анализ структурных особенностей и магнитных свойств систем на основе сверхрешеток Gd/MgO/Fe. Результаты работы являются важной частью понимания, как формируется микроскопическая картина перемагничивания в системах Gd/MgO/Fe в зависимости от характеристик слоев MgO и Gd.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Серия из четырех сверхрешеток Nb/[Gd/MgO/Fe]_{x6}/Nb с различной толщиной слоев диэлектрика MgO синтезирована методом высоковакуумного магнетронного напыления на подложки SiO₂ при комнатной температуре. В качестве буфера был использован слой Nb толщиной 20 нм. Для защиты от окисления готовые структуры также покрывали слоем Nb толщиной 5 нм. Дальнейшие исследования были проведены на четырех образцах Nb (20 нм)/[Gd (5 нм)/MgO (t нм)/Fe (5 нм)]_{x6}/Nb (5 нм), различающихся толщиной слоев диэлектрика: t = 0 нм (образец 1), t = 0.4 нм (образец 2), t = 0.8 нм (образец 3) и t = 1.2 нм (образец 4). Скорость напыления каждого материала определяли с помощью оптического профилометра Zygo New View 7300 по известному времени напыления и измеренной на профилометре высоте “ступеньки”.

Структурную характеризацию исследуемых образцов осуществляли методами рентгеновской рефлектометрии высокого разрешения. Измере-

ния были выполнены на дифрактометре Empyrean PANalytical с использованием CoK_α-излучения в геометрии параллельного пучка. Параллельный пучок сформирован с помощью рентгеновского зеркала W/Si, установленного на первичном пучке; параллельного пластинчатого коллиматора и плоского графитового монохроматора, установленных на вторичном пучке. Щель для падающего луча составляла 0.08 мм, для дифрагированного луча – 0.1 мм. Анализ рентгеновских данных проводили с помощью коммерческих программ PANalytical X'Pert Reflectometry и X'Pert Epitaxy. Магнитные свойства образцов исследовали методом вибрационной магнитометрии, измерения проводили при комнатной температуре.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Толщину слоев, плотность материалов и среднеквадратичную шероховатость границ раздела определяли методом рентгеновской рефлектометрии высокого разрешения. Установлено, что структура всех образцов идентична. На рис. 1–4 показаны экспериментальные рефлектометрические кривые (символы) и кривые наилучшего соответствия модели (линия). Параметры модельных кривых приведены в соответствующих табл. 1–3. Отметим, что толщины слоев близки к номинальным, а сформированная слоистая структура имеет довольно четкие границы раздела: шероховатость на границе между слоями составляет приблизительно 10% от толщины самого слоя. Как можно заметить, вид рефлектограммы для образца 1 значительно отличается от рефлектограмм для остальных образцов. Причина такого поведения в том, что в отсутствие прослойки MgO из-за равенства толщин слоев Fe и Gd по условиям симметрии становятся запрещенными рефлексы четных порядков. При наличии прослойки MgO появляются рефлексы четных порядков, как видно на рис. 2–4. Буферный, более толстый слой Nb, выращен непосредственно на подложке, поэтому его структура отличается от структуры более тонкого защитного слоя, что объясняет значительное различие в данных по плотности двух слоев ниобия, приведенных ниже в табл. 1–3.

Макроскопические магнитные свойства изучали с помощью лабораторного вибрационного магнитометра. На рис. 5 приведены кривые намагничивания для исследуемых образцов. Как видно из приведенного графика, введение прослойки MgO существенно изменяет магнитные свойства исследуемых систем и приводит к значительному увеличению намагниченности насыщения. Величина намагниченности насыщения в сверхрешетках с прослойками MgO примерно соответствует ее значению для не взаимодействующих пленок Fe, вклад в намагниченность от слоев Gd не обнаружен. Для образца 1 намагниченность насыщения меньше, что предполагает наличие магнитного момента в слоях Gd, который

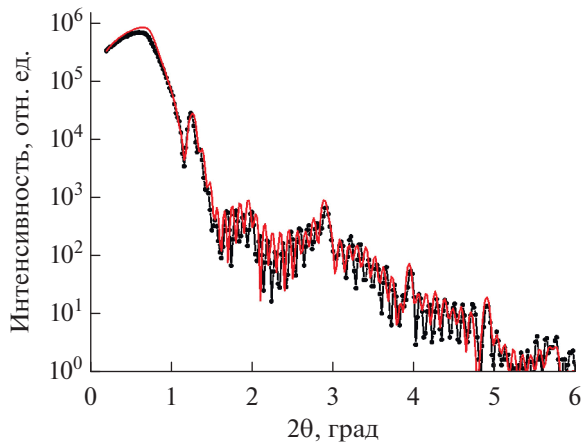


Рис. 1. Экспериментальная рентгеновая рефлектограмма образца 1 (символы) и модельная кривая (линия).

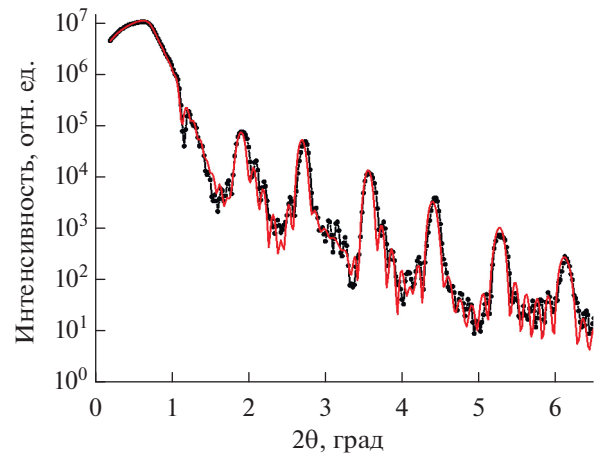


Рис. 2. Экспериментальная рентгеновая рефлектограмма образца 2 (символы) и модельная кривая (линия).

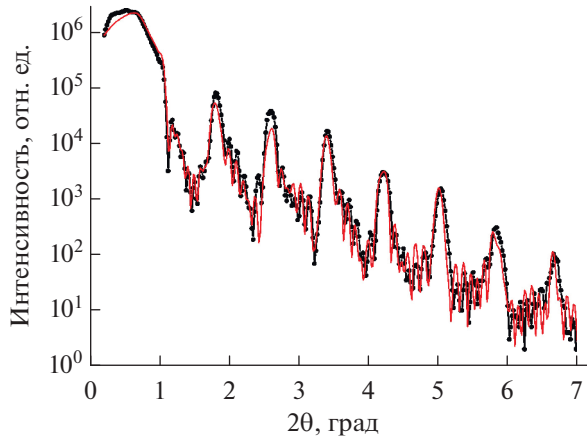


Рис. 3. Экспериментальная рентгеновая рефлектограмма образца 3 (символы) и модельная кривая (линия).

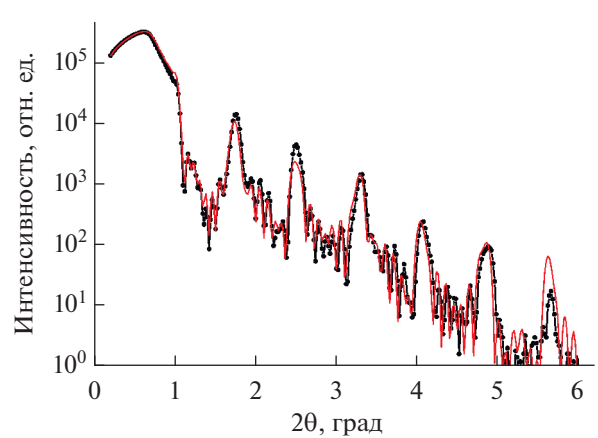


Рис. 4. Экспериментальная рентгеновая рефлектограмма образца 4 (символы) и модельная кривая (линия).

Таблица 1. Структурные параметры образца 1 с толщиной слоев диэлектрика MgO $t = 0$, полученные после обработки данных рентгеновской рефлектометрии

Материал слоя	Толщина слоя, нм	Шероховатость на границе раздела слоев, нм	Плотность, г/см ³
Nb	19	0.7	9.4
Gd	4.3	0.5	7.4
Fe	4.8	0.5	7.6
Nb	4.1	0.4	8.7
NbO ₂	2.5	0.4	5.4

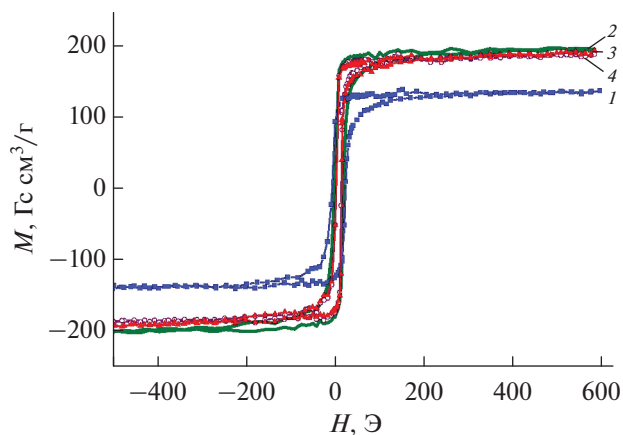


Рис. 5. Петли магнитного гистерезиса сверхрешеток с различной толщиной слоя MgO t от 0 до 1.2 нм: образец 1 (1), образец 2 (2), образец 3 (3), образец 4 (4).

антипараллелен магнитному моменту в слоях Fe. Таким образом, в системе Fe/Gd суммарный магнитный момент представляет собой разность моментов Fe и Gd, причем магнитный момент в слоях Gd сохраняется при температурах выше температуры Кюри объемного Gd.

Таким образом, наличие диэлектрической прослойки препятствует обменному взаимодействию Fe и Gd и суммарный магнитный момент определяется суммой коллинеарно упорядоченных магнитных моментов слоев Fe и Gd. В результате анализа кривых намагничивания исследуемых образцов были вычислены следующие параметры: коэрцитивная сила, намагниченность насыщения и остаточная намагниченность, их величины приведены в табл. 4.

Таблица 2. Структурные параметры образца 3 с толщиной слоев диэлектрика MgO $t = 0.8$ нм, полученные после обработки данных рентгеновской рефлектометрии

Материал слоя	Толщина слоя, нм	Шероховатость на границе раздела слоев, нм	Плотность, г/см ³
Nb	20.5	0.4	7.8
Gd	4.8	0.1	7.8
MgO	1.4	0.1	3.2
Fe	4.4	0.5	8.1
Nb	4.3	0.3	9.3
NbO ₂	2.8	0.4	5.4

Таблица 3. Структурные параметры образца 4 с толщиной слоев диэлектрика MgO $t = 1.2$ нм, полученные после обработки данных рентгеновской рефлектометрии

Материал слоя	Толщина слоя, нм	Межслойная шероховатость, нм	Плотность, г/см ³
Nb	20.5	0.8	8.8
Gd	4.8	0.4	7.8
MgO	1.7	0.1	3.2
Fe	4.5	0.4	8
Nb	4.2	0.4	9.1
NbO ₂	2.6	0.5	5.4

Таблица 4. Параметры образцов 1–4, полученные методом вибрационной магнитометрии

Образец	Толщина слоя MgO t , нм	Коэрцитивная сила, Э	Намагниченность насыщения, Гс · см ³ /г	Остаточная намагниченность, Гс · см ³ /г
1	0	16	140	120
2	0.8	10	190	150
3	1.4	8	200	155
4	1.7	8	190	155

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Были исследованы структурные особенности и магнитные свойства наносистем на основе сверхрешеток Nb(20 нм)/[Gd(5 нм)/MgO(t нм)/Fe(5 нм)] _{x_6} /Nb(5 нм) с различной толщиной слоев диэлектрика MgO ($t = 0, 0.4, 0.8$ и 1.2 нм). Методами рентгеновской рефлектометрии подтвердили формирование слоистой структуры сверхрешеток с толщинами слоев, близкими к номинальным, и величиной среднеквадратичной величины шероховатости границ раздела, приблизительно равной 10% от толщины самого слоя. В отсутствие прослойки MgO из-за равенства толщин слоев Fe и Gd, исчезают рефлексы четных порядков.

Магнитометрические исследования показали, что петли гистерезиса имеют форму, характерную для подобных структур. Величина магнитных полей насыщения оказалась равной приблизительно 300 Э. Обнаружено, что образец 1, не содержащий слоя диэлектрика, имеет существенно меньшую величину намагниченности насыщения, чем образцы с прослойкой MgO. Это означает, что в образце 1 магнитный момент слоев Gd антипараллелен магнитному моменту слоев Fe. Таким образом, в системе Fe/Gd суммарный магнитный момент представляет собой разность моментов Fe и Gd. Наличие диэлектрической прослойки препятствует обменному взаимодействию Fe и Gd, и суммарный магнитный момент определяется суммой коллинеарно упорядоченных магнитных моментов слоев Fe и Gd.

БЛАГОДАРНОСТИ

Результаты получены при финансовой поддержке Российской Федерации в лице Министерства науки и высшего образования, соглашение № 075-10-2021-115 от 13 октября 2021 г. (внутренний номер 15.СИН.21.0021). Рентгеноструктурные измерения выполнены в Центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН в рамках государственного задания Минобрнауки России (тема “Спин” № 122021000036-3).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Hellman F., Hoffmann A., Tserkovnyak Ya. et al. // *Rev. Modern Phys.* 2017. V. 89. P. 025006. <https://www.doi.org/10.1103/RevModPhys.89.025006>
- Yu G.-H., Peng W.-L., Zhang J.-Ya. // *Rare Metals.* 2017. V. 36. P. 155. <https://www.doi.org/10.1007/s12598-017-0880-2>
- Якунина Е.М., Кравцов Е.А., Хайдуков Ю.Н. и др. // *Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. ис- след.* 2021. № 8. С. 16. <https://www.doi.org/10.31857/S1028096021080185>
- Якунина Е.М., Кравцов Е.А., Хайдуков Ю.Н. и др. // *ФТТ.* 2021. № 9. С. 1306. <https://www.doi.org/10.21883/FTT.2021.09.51256.21H>
- Yanga G., Zhang J.-Y., Jiang S.-L. et al. // *Appl. Surf. Sci.* 2017. V. 396 P. 705. <https://www.doi.org/10.1016/j.apsusc.2016.11.012>
- Kozioł-Rachwał A., Janus W., Szpytma M. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 2019. V. 115. P. 141603. <https://doi.org/10.1063/1.5112093>
- Ennen I., Kappe D., Rempel T. et al. // *Sensors.* 2016. V. 16. P. 904. <https://www.doi.org/10.3390/s16060904>
- Baibich M.N., Broto J.M., Fert A. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 1988. V. 61. P. 2472. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.61.2472>
- Binasch G., Grunberg P., Saurenbach F., Zinn W. // *Phys. Rev. B.* 1989. V. 39. P. 4828. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.39.4828>
- Якунина Е.М., Боднарчук В.И., Проглядо В.В. и др. // *Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. ис- след.* 2014. № 1. С. 30. <https://www.doi.org/10.7868/S0207352814100205>
- Parkin S.S.P., Kaiser C., Panchula A. et al. // *Nature Mater.* 2004. V. 3. P. 862. <https://www.doi.org/10.1038/nmat1256>
- Elliott R.J. // *Magnetic Properties of the Rare Earth Metals.* 1972. P. 1. https://www.doi.org/10.1007/978-1-4757-5691-3_1
- Heinemann M., Temmerman W.M. // *Phys. Rev. B.* 1994. V. 49. P. 4348. <https://www.doi.org/https://doi.org/10.1103/PhysRevB.49.4348>
- Weller D., Alvarado S.F., Gudat W. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 1985. V. 54. № 14. P. 1555. <https://www.doi.org/https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.54.1555>
- Krupin O., Bihlmayer G., Starke K. et al. // *Phys. Rev. B.* 2005. V. 71. № 20. P. 201403. <https://www.doi.org/https://doi.org/10.1103/PhysRevB.71.201403>
- LeClair P., Swagten H.J.M., Kohlhepp J.T. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2000. V. 84. P. 2933. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.84.2933>
- Zhang S., Levy P.M. // *Phys. Rev. Lett.* 1998. V. 81. P. 5660. <https://www.doi.org/https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.5660>
- Zhu T., Xiang X., Shen F. et al. // *Phys. Rev. B.* 2002. V. 66. P. 094423. <https://www.doi.org/https://doi.org/10.1103/PhysRevB.66.094423>
- Takahashi Y.T., Shiota Y., Miwa S. et al. // *IEEE Transactions on Magnetism.* 2013. V. 49. P. 4417. <https://www.doi.org/10.1109/TMAG.2013.2247745>
- Funabashia N., Higashida R., Aoshima K., Machida K. // *AIP Adv.* 2019. V. 9. P. 035336. <https://doi.org/10.1063/1.5080147>

Structure and Magnetism of Nanosystems Based on Gd/MgO/Fe Superlattices

E. M. Yakunina^{1, *}, E. A. Kravtsov^{1, 2, **}, D. I. Devyaterikov¹, V. V. Proglyado¹

¹*Institute of Metal Physics, Ekaterinburg, 620108 Russia*

²*Ural Federal University, Ekaterinburg, 620075 Russia*

**e-mail: yakuninaart@yandex.ru*

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

Nanostructures based on Gd/MgO/Fe superlattices are an artificial ferromagnetic material in which the exchange interaction of the magnetic moments of Fe layers through intermediate dielectric and rare-earth layers can lead to magnetic configurations that are not realized in the well-studied Fe/Cr systems and Fe/MgO/Fe. In this work, we investigated the complex structural and magnetic properties of a series of superlattices Nb(20 nm)/[Gd(5 nm)/MgO(t nm)/Fe(5 nm)] _{x 6}/Nb(5 nm) with different thicknesses of MgO dielectric layers ($t = 0, 0.4, 0.8, \text{ and } 1.2$ nm). High-resolution X-ray reflectometry data confirmed the formation of a layered structure of superlattices with layer thicknesses close to nominal and sharp interlayer boundaries. Vibration magnetometry revealed a difference in the hysteresis loops of a sample without MgO layer and samples in which MgO layers of different thicknesses were present. A sample with zero thickness of the dielectric layers has a significantly lower saturation magnetization.

Keywords: layered magnetic nanostructures, magnetic ordering, giant tunneling magnetoresistance effect, magnetic multilayer materials, magnetic superlattices, spin-dependent electron scattering, exchange coupling, rare earth metal.