

УДК 538.955

ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕЛИМАГНЕТИЗМА В СВЕРХРЕШЕТКЕ Dy/Ho МЕТОДОМ НЕЙТРОННОЙ РЕФЛЕКТОМЕТРИИ

© 2022 г. Д. И. Девятериков^{a, *}, Е. А. Кравцов^{a, b, **}, В. В. Проглядо^a, В. Д. Жакетов^c, Ю. В. Никитенко^c

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

^bУральский федеральный университет, Екатеринбург, 620002 Россия

^cОбъединенный институт ядерных исследований, Дубна, 141980 Россия

*e-mail: devidor@yandex.ru

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

Поступила в редакцию 11.01.2022 г.

После доработки 16.02.2022 г.

Принята к публикации 16.02.2022 г.

Представлены результаты исследования сверхрешетки из чередующихся слоев редкоземельных гелимагнетиков [Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] × 34 методами нейтронной рефлектометрии и рентгеновской дифракции. Было показано, что при росте структур гелимагнетиков на подложках сапфира с буферным слоем Nb методом магнетронного напыления наблюдаются ориентационные соотношения $(1\bar{1}02)Al_2O_3\parallel(110)Nb\parallel(0001)(Dy/No)$ и происходит полная релаксация кристаллических решеток Nb и структуры редкоземельных гелимагнетиков. Также было установлено, что в образце формируются магнитные геликоиды двух типов, когерентно распространяющиеся в слоях Dy и Ho соответственно, с периодами и температурами Нееля и Кюри, отличными от характеристических температур монокристаллов и тонких однокомпонентных пленок Dy и Ho.

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

DOI: 10.31857/S1028096022100077

ВВЕДЕНИЕ

Тяжелые редкоземельные металлы Dy и Ho обладают интересными магнитными свойствами, к числу которых относятся большие значения магнитных моментов их атомов и различные типы длиннопериодических модулированных магнитных структур [1], включая геликоидальное магнитное упорядочение. Магнитные свойства объемных кристаллов Dy и Ho достаточно хорошо изучены, однако магнетизм наноструктур на основе Dy и Ho исследован слабо.

Гексагональные плотноупакованные кристаллические решетки Dy и Ho обладают практически идентичными параметрами: $a = 0.35903$ нм, $c = 0.56475$ нм у Dy и $a = 0.35773$ нм, $c = 0.56158$ нм у Ho [2]. Геликоидальное магнитное упорядочение существует в диапазоне температур от $T_N = 178$ К до $T_C = 85$ К для Dy [3, 4] и от $T_N = 132$ К до $T_C = 18$ К для Ho [5–7]. Ниже T_C Dy становится ферромагнитным с вектором намагниченности, лежащим в базисной плоскости, тогда как Ho испытывает магнитный фазовый переход в кони-

ческую фазу с соразмерным с параметром решетки периодом.

Исследование геликоидального упорядочения в тонких пленках Dy и Ho показало значительные отличия их магнитных свойств от свойств объемных монокристаллов. Так, в пленках Dy обнаружено существенное понижение температуры Кюри и сосуществование ферромагнитной и геликоидальной фаз ниже этой температуры [8, 9]. В то же время в пленках Ho установлена зависимость T_N от толщины пленки и отсутствие перехода в соразмерную коническую фазу при температуре ниже T_C [9, 10]. Близость параметров кристаллических решеток Dy и Ho дает надежду на получение эпитаксиальных либо текстурированных сверхрешеток Dy/No с магнитными свойствами, отличными как от объемных монокристаллов, так и от тонких пленок Dy и Ho. Так, при исследовании шести сверхрешеток Dy/No [11–13], лишь две из которых – Dy(9 нм)/Ho(3.1 нм) и Dy(4.5 нм)/Ho(6.2 нм) [11] – были изучены с помощью дифракции нейтронов, было установлено, что в слоях Dy и Ho этих сверхрешеток формируются длиннопериодические геликоидальные

магнитные структуры, когерентно распространяющиеся в сверхрешетке. При этом T_N слоев Ho несколько увеличена ($T_N = 135\text{--}140\text{ K}$) по сравнению с объемным Ho. Периоды геликоидов в слоях Dy и Ho отличаются, а переход в ферромагнитную фазу полностью подавлен.

Следует отметить, что исследование тонких редкоземельных пленок и сверхрешеток методами нейтронной дифрактометрии в области больших углов чрезвычайно затруднено ввиду малого количества рассеивающего материала. В [14] было показано, что в случае геликоидальных длиннопериодических структур эффективным методом исследования может быть нейтронная рефлектометрия. Она предполагает регистрацию падающего на образец при углах скольжения пучка нейтронов и позволяет детектировать положение и интенсивность магнитного сателлита 0000^+ , отвечающих периоду геликоида и параметру порядка для геликоидальной фазы соответственно. При такой постановке эксперимента путь нейтронного пучка через образец увеличивается, что смягчает требования к количеству рассеивающего материала в сверхрешетке. Целью настоящей работы было применение нейтронной рефлектометрии для исследования магнитной структуры тонких пленок Dy/Ho, в частности, определение температур магнитных фазовых переходов в этих пленках и изучение температурных зависимостей периодов геликоидального магнитного упорядочения в них.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Сверхрешетка [Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] \times 34 была выращена на монокристаллических подложках $(1\bar{1}02)\text{Al}_2\text{O}_3$ методом высоковакуумного магнетронного распыления на установке ULVAC-MPS-4000-S6 при типичных скоростях роста около 1 мс/с (мс – монослой). 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 была выращена структура. Для защиты от окисления был нанесен слой Nb толщиной 10 нм.

Структурную характеристику образцов проводили на лабораторном дифрактометре Empyrean в геометрии $\theta\text{--}2\theta$ с использованием CoK_α -излучения с энергией 6.929 кэВ в центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН. Исследовали кристаллическую структуру пленок вдоль нормали к их поверхности.

Нейтронные измерения были выполнены на времяпролетном рефлектометре REMUR, функционирующем на базе импульсного быстрого реактора ИБР-2 в лаборатории нейтронной физики ОИЯИ. Спектры снимали в приложенном в плоскости образца внешнем магнитном поле напря-

женностью 1 кЭ при различных температурах в диапазоне от 220 до 1.5 К. Экспериментальные данные были нормированы на интенсивность прямого пучка, после преобразованы из инструментальной системы координат в систему координат обратного пространства с помощью программного обеспечения Överlåtaren [15] и нормированы на время.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 приведена измеренная в зеркальной геометрии $\theta\text{--}2\theta$ рентгеновская дифрактограмма сверхрешетки [Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] \times 34. Помимо рефлексов подложки на дифрактограмме виден рефлекс 110 буферного слоя Nb, а также рефлексы 0001 первого, второго и третьего порядка ГПУ-структуры Dy/Ho. Наблюдается также вклад других отражений, однако он незначителен. Из анализа дифрактограммы установлено, что в пределах экспериментальной погрешности параметры кристаллических решеток Nb, Ho и Dy соответствуют параметрам объемных кристаллов. Таким образом, при росте структур редкоземельных гелимагнетиков на подложках сапфира с буферным слоем Nb в экспериментальных условиях реализуется наблюдавшееся ранее в [16, 17] ориентационное соотношение $(01\bar{1}2)\text{Al}_2\text{O}_3\parallel(110)\text{Nb}\parallel(0001)(\text{Dy}/\text{Ho})$ и происходит полная релаксация кристаллических решеток Nb и редкоземельных металлов.

Эволюцию геликоидального магнитного упорядочения в сверхрешетке Dy/Ho с температурой изучали с помощью анализа положения и интенсивности магнитного сателлитного рефлекса 0000^+ , появляющегося вследствие рассеяния нейтронов на магнитных геликоидах, волновой вектор которых направлен нормально к поверхности образца. На рис. 2 представлены двумерные карты рассеяния нейтронов в координатах компонент вектора рассеяния (Q_x , Q_z), измеренные в магнитном поле 1 кЭ, приложенном в плоскости образца, при различных температурах сверхрешетки. Вертикальная линия при значениях $Q_x = 0$ соответствует зеркальному отражению нейтронов от сверхрешетки, горизонтальные линии $Q_z = \text{const}$ отвечают диффузному рассеянию, магнитным сателлитам и брэгговским рефлексам, возникающим вследствие рассеяния нейтронов на межслойных границах. Положение этих рефлексов по оси ординат соответствует периоду геликоида и суммарной толщине повторяющихся слоев Dy и Ho. Два рефлекса, сосуществующих в диапазоне температур 50–120 К, положение и интенсивность которых зависят от температуры, были ассоциированы с магнитными геликоидами, когерентно распространяющимися в слоях Dy и Ho.

На рис. 3 приведена температурная зависимость периода геликоидов в сравнении с ранее

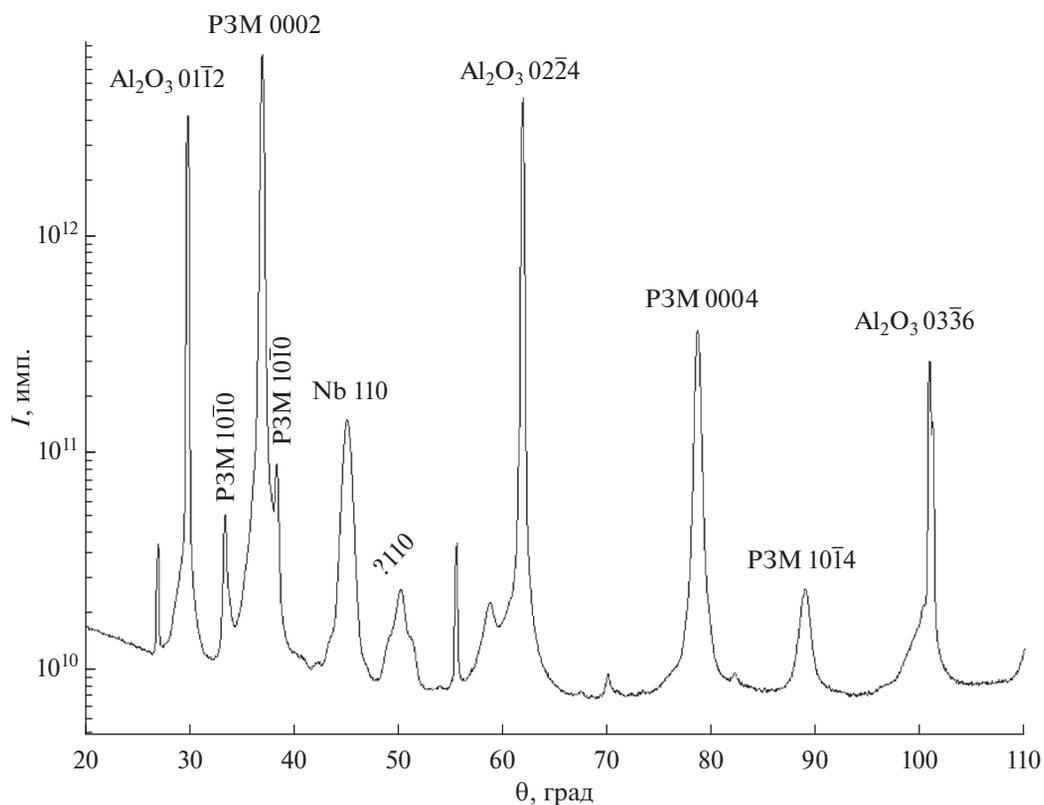


Рис. 1. Рентгеновская дифрактограмма сверхрешетки [Dy (6 нм)/Ho(6 нм)] × 34. PЗМ – редкоземельный металл.

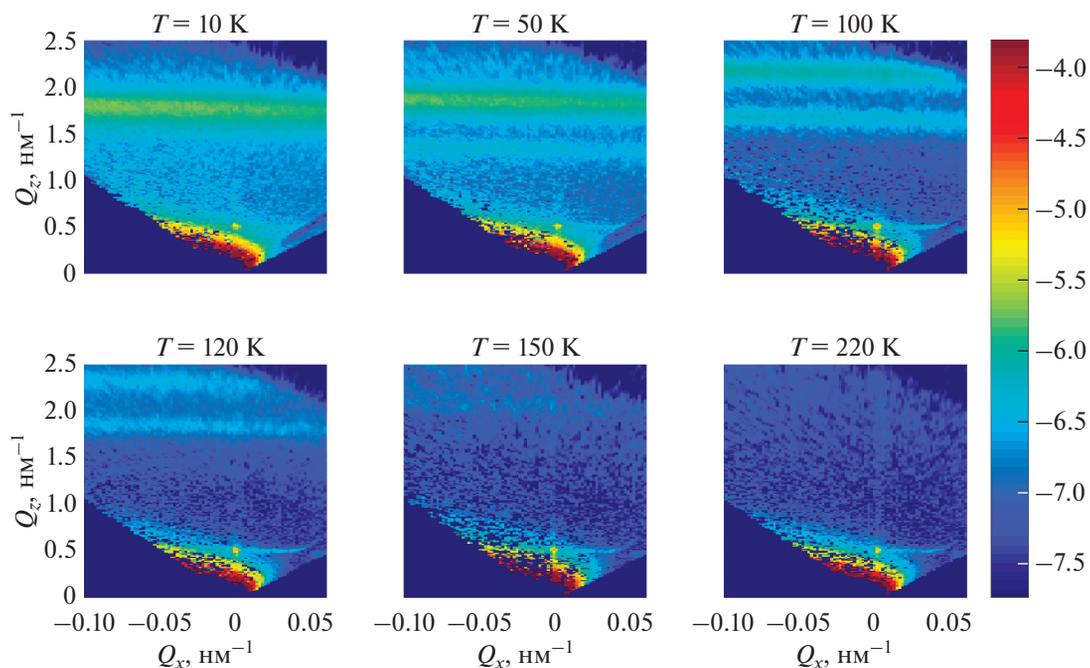


Рис. 2. Рефлектометрические спектры сверхрешетки [Dy (6 нм)/Ho(6 нм)] × 34 в координатах компонент вектора рассеяния Q .

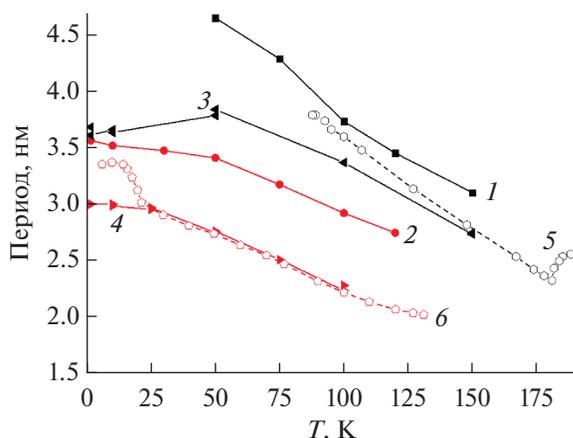


Рис. 3. Температурная зависимость периода геликоидов в объемных монокристаллах Dy [3] (1) и Ho [18] (2), в тонких (200 нм) пленках Dy (3) и Ho [9] (4) и в сверхрешетке Dy (5), Ho (6).

полученными результатами для пленок Dy (200 нм) и Ho (200 нм) [17], а также с периодами магнитных геликоидов в объемных монокристаллах Dy [3] и Ho [18]. Очевидно, что магнитные свойства слоев Dy и Ho в гетероструктуре существенно отличаются от свойств тонких пленок и объемных монокристаллов Dy и Ho. Так, период геликоидов в слоях сверхрешетки существенно превосходит период геликоидов в тонких пленках и монокристаллах Dy и Ho. Характеристические температуры T_C и T_N слоев Dy в сверхрешетке и тонкой пленке существенно меньше по сравнению с монокристаллом, однако в отличие от геликоида в пленке Dy (200 нм) геликоидальное упорядочение в слоях Dy в сверхрешетке полностью исчезает в температурном диапазоне 30–50 К. Для слоев пониженной размерности в тонкой пленке и сверхрешетке Ho характерно отсутствие спин-слип-перехода в соразмерную ($\Lambda_{Ho} = c \times 6$) коническую фазу ниже T_C монокристалла Ho, что, по-видимому, объясняется эпитаксиальными напряжениями в наноструктурах. Уникальной особенностью слоев Ho в сверхрешетке является необычно высокая T_N по сравнению с тонкой пленкой Ho (200 нм). Аналогичный эффект был обнаружен при исследовании сверхрешеток Dy/Ho в [11], где его возникновение связывали со спиновой поляризацией слоев Ho соседними слоями Dy.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в ходе изучения атомной и магнитной структуры сверхрешетки [Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] \times 34 методами рентгеновской дифрактометрии и нейтронной рефлектометрии было установлено, что в образце формируются два различных магнитных геликоида, когерентно распространяющихся в слоях Dy и Ho соответственно,

температуры Нееля и Кюри которых отличаются от соответствующих температур монокристаллов и тонких пленок. Сравнение с монокристаллами и тонкими пленками Dy и Ho позволяет утверждать, что геликоидальное магнитное упорядочение в слоях Dy и Ho существенным образом зависит от толщины и окружения этих слоев и не связано с эпитаксиальными напряжениями в наноструктуре. В результате анализа температурной зависимости периода геликоидов в сверхрешетке [Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] \times 34 установлено подавление магнитного фазового перехода слоев Ho из геликоидальной фазы в соразмерную коническую фазу, уменьшение T_C в слоях Dy по сравнению с T_C монокристалла Dy и рост T_N в слоях Ho.

БЛАГОДАРНОСТИ

Синтез образцов проведен в центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН. Рентгеноструктурные исследования выполнены в рамках госзадания № 122021000036-3 “Спин”, нейтронографические исследования выполнены при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Соглашения № 075-15-2022-830 от 27 мая 2022 г. (продолжение Соглашения № 075-15-2021-1358 от 12 октября 2021 г.).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Elliott J. Magnetic Properties of Rare Earth Metals. N.Y.: Plenum, 1972. 420 p.
2. Whittaker E.J.W. (R.W.G.) Wyckoff Crystal Structures. N.Y.: Interscience Publishers, 1963. 588 p.
3. Yu J., LeClair P.R., Mankey G.J., Robertson J.L., Crow M.L., Tian W. // Phys. Rev. B. 2015. V. 91. № 014404. P. 1. <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.151.6A.414>
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. 1988. V. 21. № 22. P. 4113. <https://doi.org/10.1088/0022-3719/21/22/024>
8. Tsui F., Flynn C.P. // Phys. Rev. Lett. 1993. V. 71. № 9. P. 1462. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1462>
9. Девятериков Д.И., Проглядо В.В., Жакетов В.Д., Никитенко Ю.В., Кондратьев О.А., Пашаев Э.М., Субботин И.А., Зверев В.И., Кравцов Е.А., Устинов В.В. // Физика металлов и металловедение. 2021. Т. 122. № 5. С. 499. <https://doi.org/10.31857/S001532302105003X>

10. *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. № 5. P. 157204.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.93.157204>
11. *Simpson J.A., Cowley R.A., McMorrow D.F., Ward R.C., Wells M.R., Carlile C.J., Adams M.A.* // *J. Phys.: Condens. Matter.* 1996. V. 8. № 11. P. L187.
<https://doi.org/10.1088/0953-8984/8/11/005>
12. *Del Moral A., de la Fuente C., Benito L., Arnaud J.I., Ciria M., Ward R.C.C., Wells M.R.* // *J. Magn. Magn. Mater.* 2001. V. 226–230. № 2. P. 1700.
[https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(00\)00760-5](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(00)00760-5)
13. *Benito L., Roky K., Ciria M., Arnaud J.I., de la Fuente C., del Moral A., Ward R.C.C., Wells M.R., Matheny A.* // *J. Magn. Magn. Mater.* 2004. V. 272. P. 2088.
<https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2003.12.847>
14. *Leiner V., Labergier D., Siebrecht R., Sutter H., Zabel H.* // *Physica B.* 2000. V. 283. № 1–3. P. 167.
[https://doi.org/10.1016/S0921-4526\(99\)01923-7](https://doi.org/10.1016/S0921-4526(99)01923-7)
15. *Adlmann F.A., Palsson G.K., Bilheux J.C., Ankner J.F., Gutfreund P., Kawecki M., Wolff M.* // *J. Appl. Crystallogr.* 2016. V. 49. P. 2091.
<https://doi.org/10.1107/S1600576716014382>
16. *Majkrzak C.F., Kwo J., Yng M., Yafet Y., Gibbs D., Chen C.L., Bohr J.* // *Adv. Phys.* 1991. V. 40. № 2. P. 99.
<https://doi.org/10.1080/00018739100101482>
17. *Devyaterikov D.I., Vas'kovsky V.O., Zhaketov V.D., Kravtsov E.A., Makarova M.V., Proglyado V.V., Stepanova E.A., Ustinov V.V.* // *Phys. Met. Metallogr.* 2020. V. 121. № 12. P. 1127.
<https://doi.org/10.1134/S0031918X20120042>
18. *Pechan M.J., Stassis C.* // *J. Appl. Phys.* 1984. V. 55. № 6. P. 1900.
<https://doi.org/10.1063/1.333513>

Study of Helimagnetism in Dy/Ho Superlattice by Neutron Reflectometry

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

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

²*Ural Federal University, Ekaterinburg, 620002 Russia*

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

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

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

The results of studying a superlattice of alternating layers of rare-earth helimagnets [Dy(6 nm)/Ho(6 nm)] × 34 by neutron reflectometry and X-ray diffraction are presented. It is shown that during the growth of helimagnetic structures on sapphire substrates with a Nb buffer layer by magnetron sputtering, the orientational relations (01 $\bar{1}2$)Al₂O₃|| (110)Nb|| (0001) (Dy/Ho) and the crystal lattices of Nb and the structure of rare-earth helimagnets are completely relaxed. It is also found that two different magnetic helicoids are formed in the sample, propagating coherently in Dy and Ho layers, respectively, with periods and Neel and Curie temperatures that differ from the characteristic temperatures of single crystals and thin one-component Dy and Ho films.

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