

垂直各向异性 $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 薄膜的外延生长与其异质结构的自旋输运

杨萌 白鹤 李刚 朱照照 竺云 苏鉴 蔡建旺

Epitaxial growth of $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ films with perpendicular magnetic anisotropy and spin transport properties in $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}/\text{Pt}$ heterostructures

Yang Meng Bai He Li Gang Zhu Zhao-Zhao Zhu Yun Su Jian Cai Jian-Wang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 077501 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201737

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201737>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

过量B的Ta/CoFeB/MgO薄膜垂直各向异性和温度稳定性的增强

Large enhanced perpendicular magnetic anisotropy and thermal stability in Ta/CoFeB/MgO films with excess boron

物理学报. 2017, 66(1): 017502 <https://doi.org/10.7498/aps.66.017502>

自旋轨道矩调控的垂直磁各向异性四态存储器结构

Demonstration of four-state memory structure with perpendicular magnetic anisotropy by spin-orbit torque

物理学报. 2018, 67(11): 117501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180216>

$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG)/Pt异质结构中基于超快自旋塞贝克效应产生太赫兹相干辐射研究

Terahertz emission from $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG)/Pt heterostructures via ultrafast spin Seebeck effect

物理学报. 2020, 69(20): 208704 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200733>

超构材料中的光学量子自旋霍尔效应

Quantum spin Hall effect in metamaterials

物理学报. 2017, 66(22): 227803 <https://doi.org/10.7498/aps.66.227803>

掺铌 SrTiO_3 中的逆自旋霍尔效应

Inverse spin Hall effect in Nb doped SrTiO_3

物理学报. 2019, 68(10): 106101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190118>

自旋轨道耦合系统中的整数量子霍尔效应

Integer quantum Hall effect in a spin-orbital coupling system

物理学报. 2019, 68(11): 117101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190037>

垂直各向异性 $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 薄膜的外延生长 与其异质结构的自旋输运*

杨萌¹⁾²⁾ 白鹤²⁾ 李刚²⁾ 朱照照²⁾ 竺云^{1)†} 苏鉴²⁾ 蔡建旺²⁾

1) (天津师范大学物理与材料科学学院, 天津 300387)

2) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 磁学国家重点实验室, 北京 100190)

(2020 年 10 月 20 日收到; 2020 年 12 月 5 日收到修改稿)

垂直磁各向异性稀土-铁-石榴石纳米薄膜在自旋电子学中具有重要应用前景. 本文使用溅射方法在 (111) 取向掺杂钇钆的钆镓石榴石 ($\text{Gd}_{0.63}\text{Y}_{2.37}\text{Sc}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$, GYSGG) 单晶衬底上外延生长了 2—100 nm 厚的铁石榴石 ($\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, HoIG) 薄膜, 并进一步在 HoIG 上沉积了 3 nm Pt 薄膜. 测量了室温下 HoIG 的磁各向异性和 HoIG/Pt 异质结构的自旋相关输运性质. 结果显示, 厚度薄至 2 nm 的 HoIG 薄膜 (小于 2 个单胞层) 在室温仍具有铁磁性, 且由于外延应变, 2—60 nm 厚 HoIG 薄膜都具有很强的垂直磁各向异性, 有效垂直各向异性场最大达 350 mT; 异质结构样品表现出非常可观的反常霍尔效应和“自旋霍尔/各向异性”磁电阻效应, 前者在 HoIG 厚度小于 4 nm 时开始缓慢下降, 而后者当 HoIG 厚度小于 7 nm 时急剧减小, 说明相较于反常霍尔效应, 磁电阻效应对 HoIG 的体磁性相对更加敏感; 此外, 自旋相关热电压随 HoIG 厚度减薄在整个厚度范围以指数方式下降, 说明遵从热激化磁振子运动规律的自旋塞贝克效应是其主要贡献者. 本文结果表明 HoIG 纳米薄膜具有可调控的垂直磁各向异性, 厚度大于 4 nm 的 HoIG/Pt 异质结构具有高效的自旋界面交换作用, 是自旋电子学应用发展的一个重要候选材料.

关键词: 垂直磁各向异性, 反常霍尔效应, 自旋霍尔磁电阻

PACS: 75.70.-i, 75.30.Gw, 72.25.-b

DOI: 10.7498/aps.70.20201737

1 引言

石榴石结构铁氧体磁性材料自 1956 年被发现以来, 已广泛地应用于微波、磁光器件^[1]. 近年来, 以自旋波或磁振子为核心的自旋电子学新分支的兴起使人们对稀土-铁-石榴石薄膜材料特别关注. 事实上, 由于钇铁石榴石 ($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, YIG) 单晶具有极大的磁振子传输长度和非常好的绝缘性, 在自旋塞贝克效应、自旋泵浦效应、自旋波电子学乃至拓扑自旋电子学的研究中, YIG 单晶薄膜成为人们青睐的材料^[2–5]. 需要强调的是, 具有垂直磁各

向异性 (perpendicular magnetic anisotropy, PMA) 的稀土-铁-石榴石薄膜将更有利于自旋波电子学器件^[6–8] 以及基于自旋-轨道力矩的非易失磁随机存储器^[9–11] 的进一步发展. 由于稀土-铁-石榴石属于立方晶系, 高度对称性使得这类铁氧体材料的磁晶各向异性能 (magnetocrystalline anisotropy, MCA) 很小, 薄膜材料通常以形状各向异性为主导, 易磁化方向平行于膜面^[12], 因而高质量 PMA 石榴石铁氧体薄膜的制备一直以来都具有挑战性.

传统的高质量 YIG 和其他石榴石铁氧体薄膜一般使用液相外延方法生长, 常用钆镓石榴石 ($\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, GGG) 单晶作为衬底, 薄膜厚度通常

* 国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0300804, 2018YFB0703500) 和国家自然科学基金 (批准号: 11674379) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wdxzyz@tjnu.edu.cn

为微米级. 在自旋电子学研究中, 厚度为亚微米和纳米级的 YIG 薄膜更加受到重视, 目前这类纳米薄膜广泛采用脉冲激光沉积或磁控溅射方法外延生长. 在相关薄膜制备过程中, 通过掺杂来改变衬底和薄膜的晶格失配度以产生失配应力来调控磁弹各向异性, 成功获得了垂直磁各向异性的石榴石磁性薄膜, 如在 GGG 单晶衬底上液相外延生长了垂直各向异性 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 薄膜^[13]; 通过脉冲激光沉积在 GGG 衬底上外延生长了 Mn 掺杂 YIG 薄膜, 其有效垂直各向异性场达到了 210 mT^[14]; 利用溅射方法在不同掺杂的 GGG 衬底上外延生长的纯 YIG 薄膜, 得到大小可调节的垂直磁各向异性^[15]. 不过, 由于 YIG 的磁致伸缩系数较小, 目前得到的 YIG 样品有效各向异性场 H_k 都比较小, 研究最多的垂直磁性薄膜是具有较大磁致伸缩系数的 $\text{Tm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ^[16]. 此外, 最近人们利用外延应力还成功生长了 $\text{Tb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, $\text{Eu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, $\text{Sm}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, $\text{Dy}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 等不同稀土-铁-石榴石垂直磁各向异性薄膜^[17–19]. 室温下 $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (HoIG) 具有与 YIG 相同大小的晶格参数, 磁致伸缩系数符号相同但数值大 2/3, 而饱和磁化强度约为 YIG 的一半^[1], 在一定的应变下有望实现比 YIG 强得多的垂直磁各向异性. 本文研究了 2—100 nm 不同厚度 HoIG 薄膜的外延生长与垂直磁各向异性以及 HoIG/Pt 异质结构的自旋输运性质, 获得了高质量的外延垂直各向异性薄膜, 有效垂直各向异性场最大达 350 mT, 相关的异质结构具有高效的自旋界面交换作用, 为自旋电子学发展提供了新材料和新思路.

2 实验过程

本文采用超高真空离轴磁控溅射方法, 在 (111) 取向的 $(\text{Gd}_{0.63}\text{Y}_{2.37})(\text{Sc}_2\text{Ga}_3)\text{O}_{12}$ (GYSGG) 单晶衬底上分别生长了 2, 3, 4, 7, 10, 15, 20, 30, 40, 60, 100 nm 的 HoIG 薄膜. 溅射系统的背底真空优于 3×10^{-6} Pa, 工作气体为高纯 Ar 气, 溅射气压 1.0 Pa, 使用的射频溅射功率为 50 W, 溅射速率为 0.164 Å/s. 所有 HoIG 样品都在室温下溅射以抑制薄膜与衬底之间的互扩散, 溅射得到的制备态样品放入真空石英管退火炉中, 通以高纯氧气至 450 Pa 在 800 °C 下退火 2 h. 退火后的 HoIG 薄膜重新置于溅射系统, 薄膜上紧密覆盖 0.2 mm

厚的金属掩膜板 (掩膜板的中间主狭缝宽度为 0.5 mm, 两垂直狭缝宽度均为 0.3 mm, 垂直狭缝间距为 3.4 mm), 通过直流溅射沉积 3 nm 厚的 Pt, 获得标准霍尔棒 Pt 图形, 用于磁输运测量. 薄膜溅射速率由 X 射线反射率测量 20—30 nm 厚膜标定. 采用 Bruker D8 衍射仪测量薄膜的 X 射线反射率、 $2\theta/\omega$ 扫描以及倒易空间图 (reciprocal space mapping, RSM). HoIG 薄膜的表面粗糙度使用原子力显微镜进行了测量. 薄膜磁性采用振动样品磁强计 (VSM) 测量. 磁输运测量在自制的磁输运测量系统中完成, 样品的电阻、霍尔电阻通过四端子法测量; 测量纵向自旋塞贝克效应时, 衬底背面和样品表面通过导热胶分别与加热 Cu 片 (13 mm × 9 mm × 0.5 mm) 和热沉 Cu 块 (直径 30 mm, 高 125 mm) 保持良好热接触, 调整加热器功率使衬底背面和样品表面之间的稳定温度差为 13 K. 详尽磁输运测量信息可参考我们近期发表的文献^[15]. 本文所有测量均在室温下进行.

3 实验结果与讨论

图 1(a) 和图 1(b) 给出了代表性样品 10 和 40 nm HoIG 单层薄膜的 X 射线衍射 (X-ray diffraction, XRD) $2\theta/\omega$ 扫描图谱. 除了来自衬底 GYSGG (444) 的强大衍射峰和随膜厚变化的 HoIG (444) 衍射峰及其卫星峰, 没有出现杂质相的衍射峰. 图中以虚线标示了块体 HoIG (444) 的衍射峰位 (51.099°), 薄膜的衍射峰相比于块体峰位出现了明显的右移. 峰位的右移意味着 HoIG 的 (444) 晶面间距收缩, GYSGG 衬底的晶格常数为 12.506 Å, 而 HoIG 的晶格常数为 12.375 Å, 显然生长在 GYSGG 单晶衬底上的 HoIG 薄膜, 在平行膜面方向受到拉应力, 原子间距被拉大, 进而使垂直膜面方向的晶面间距变小. 图 1(a) 和图 1(b) 中的插图为对应 HoIG (444) 峰的摇摆曲线. 10 和 40 nm HoIG 样品摇摆曲线半峰宽分别为 0.035° 和 0.069° , 窄的半峰宽表明两个样品 (444) 晶面的角发散很小, 结合 XRD 的结果, 说明 HoIG 薄膜具有很高的结晶质量; 40 nm 样品的摇摆曲线半峰宽有所增加, 说明较厚 HoIG 薄膜中部分晶面偏离 (444) 方向相对增大.

为了进一步表征衬底对薄膜产生的应变与分布, 图 1(c) 和图 1(d) 分别给出了代表性样品 10 和 40 nm HoIG 薄膜围绕 (486) 衍射峰的倒易空间

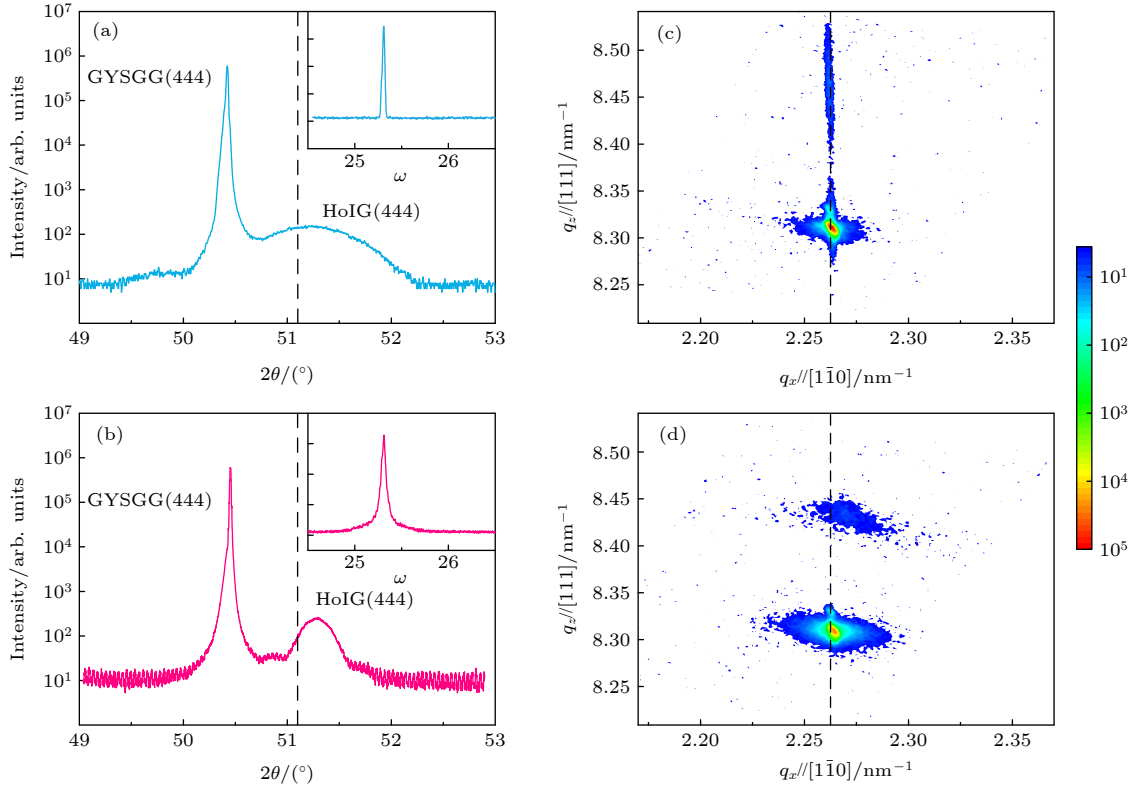


图 1 (a) 10 nm 和 (b) 40 nm HoIG 薄膜的 X 射线衍射图, 图中虚线为块体 HoIG (444) 衍射峰位, 图中插图分别为对应 HoIG 薄膜的 (444) 衍射峰的摇摆曲线. (c) 10 nm 和 (d) 40 nm HoIG 薄膜围绕其 (486) 衍射的 X 射线衍射倒易空间图, 虚线对应衬底 (486) $_{//}$ [1 $\bar{1}$ 0] 的 q_x 值

Fig. 1. XRD spectra for (a) 10 nm and (b) 40 nm HoIG film, the dashed line is the (444) peak position of bulk HoIG, the inset is rocking curve of 10 nm and 40 nm HoIG (444) peak, respectively. The reciprocal space mapping of XRD around (486) diffraction for (c) 10 nm and (d) 40 nm HoIG film, the dashed line corresponds to the q_x value of the GYSGG (486) $_{//}$ [1 $\bar{1}$ 0].

图 RSM, 图中黑色虚线标示出了 GYSGG 衬底平行于 [1 $\bar{1}$ 0] 方向的 q_x . 对于 10 nm 的 HoIG 薄膜样品, 其 q_x 相对于衬底几乎不出现偏移, 表明 HoIG 在膜面内方向比较理想地沿 GYSGG 衬底晶格外延生长, 薄膜面内方向几乎没有发生应变弛豫, 即 HoIG 在生长过程中平行于衬底的晶面基本按照衬底晶格大小生长. RSM 结果显示 40 nm HoIG 样品同样具有很好的外延生长特性. 不过, 相比于 10 nm 样品, 40 nm 样品的 q_x 相对于衬底有了明显的偏移, 外延应变发生了一定的弛豫. 通过分析 RSM 简单估计了薄膜样品的应变和内应力: 10 nm 样品具有完全应变, 其面内应变 $\varepsilon_{//}$ 大致等于晶格失配比 $\varepsilon_{//} = \eta = (a_{\text{sub}} - a_{\text{HoIG}})/a_{\text{HoIG}} = 1.06\%$; (111) 面间距平均为 $d_{111} = (1/q_z) \times 6 = 7.085 \text{ \AA}$, 因此垂直方向应变 $\varepsilon_{\perp} = [d_{111} - d_{111}(\text{bulk})]/d_{111}(\text{bulk}) = -0.840\%$; 对于 40 nm 的样品, 其 $\varepsilon_{//}$ 不能等同于晶格失配比, (1 $\bar{1}$ 0) 面的面间距由公式可估计得 $d_{110} = (1/q_x) \times 2 = 8.822 \text{ \AA}$, 相应的面内应变 $\varepsilon_{//} = [d_{110} -$

$d_{110}(\text{bulk})]/d_{110}(\text{bulk}) = 0.799\%$, 垂直应变计算方式和前面相同, $\varepsilon_{\perp} = -0.434\%$. 薄膜样品的内应力 $\sigma_{//}$ 可以通过下面公式^[20] 得到:

$$\sigma_{//} = \frac{Y}{1 - \nu} \varepsilon_{//}, \quad (1)$$

其中 Y 是 HoIG 的杨氏模量 $Y = 2.00 \times 10^{11} \text{ N/m}^2$, ν 是泊松比 $\nu = 0.29$. 将测量所得的应变值代入 (1) 式, 可得 10 和 40 nm 薄膜的面内张应力分别为 3×10^9 和 $2.45 \times 10^9 \text{ N/m}^2$.

HoIG 薄膜内的张应力将产生垂直膜面方向的磁弹各向异性, 可表示为

$$K_{\sigma A} = -\frac{3}{2} \lambda_{111} \sigma_{//}, \quad (2)$$

其中 λ_{111} 为 HoIG 晶体在 [111] 方向的磁致伸缩系数, 数值为 -4.0×10^{-6} . 此外, HoIG 薄膜还具有一定的磁晶各向异性 K_{MCA} 和形状各向异性 K_{shape} , 三者共同构成了薄膜的磁各向异性, $K_{\text{eff}} = K_{\sigma A} + K_{\text{MCA}} + K_{\text{shape}}$. 立方晶系沿 [111] 方向的磁晶各向异性经计算可表达为 $K_{\text{MCA}} = -2K_1/3$,

这里 K_1 是一阶磁晶各向异性常数, 对于 HoIG, $K_1 = -5 \times 10^2 \text{ J/m}^3$; 由退磁场引起的形状各向异性能 $K_{\text{shape}} = -\mu_0 M_s^2/2$, 式中 M_s 为饱和磁化强度, 通过 VSM 测得厚 HoIG 薄膜的结果为 64.5 kA/m , 与文献报道 HoIG 块体的数值一致^[1]. 结合上文结构表征所获得的薄膜中的外延应力, 对于 10 和 40 nm HoIG 薄膜, 理论上估计其有效各向异性场, $H_K = 2K_{\text{eff}}/\mu_0 M_s$, 结果在表 1 中列出. 可以看出, HoIG 样品由于外延应变导致了正的 H_K , 即具有垂直磁各向异性; 此外, 应变、应力和有效垂直各向异性场的大小均依赖于薄膜厚度, 随着厚度的增加, 应变、应力逐渐弛豫而减小, 垂直各向异性场减小.

表 1 10 和 40 nm HoIG 薄膜的面内应变 $\varepsilon_{//}$ 、面外应变 ε_{\perp} 、平行膜面内应力 $\sigma_{//}$ 和有效垂直各向异性场 H_K
Table 1. The in-plane strain ($\varepsilon_{//}$), perpendicular strain (ε_{\perp}), in-plane stress ($\sigma_{//}$) and effective perpendicular anisotropy field (H_K) for 10 and 40 nm HoIG films.

t/nm	$\varepsilon_{//}/\%$	$\varepsilon_{\perp}/\%$	$\sigma_{//}/10^9 \text{ N}\cdot\text{m}^{-2}$	$\mu_0 H_K/\text{mT}$
10	1.06	-0.84	3.0	487
40	0.87	-0.43	2.25	348

除了良好的外延生长特性, HoIG 薄膜表面非常平整. 原子力显微镜测量结果显示所有样品表面粗糙度的均方根值全都小于 0.38 nm , 其中 2 nm HoIG 薄膜的表面粗糙度为 0.17 nm , 10 nm 薄膜为 0.24 nm . 实际上, 10 nm 以下样品几乎与单晶基片的表面粗糙度相同. 磁性方面, 由于 HoIG 的饱和磁化强度很小, 大致为 YIG 的一半, 纳米薄膜尤其超薄膜的铁磁磁矩信号非常弱, 加之 GYSGG 衬底具有强烈的顺磁信号, 所以直接的磁测量对于厚度在 10 nm 以下的薄膜非常困难. 下面对 HoIG 薄膜磁性特别是垂直磁各向异性的表征主要通过 HoIG/Pt 异质结构的磁输运测量来完成.

先介绍 HoIG/Pt 异质结构的反常霍尔效应测量结果. 需要指出的是“磁性绝缘体/Pt”异质结构的反常霍尔效应 (AHE) 来源于自旋霍尔效应 (SH) 和/或磁近邻效应 (MPE)^[21–23], 虽然两者至今无法被实验严格区分开来, 但无论何种来源, 相关的反常霍尔电阻都与绝缘磁性层的垂直磁化分量成正比, 因而异质结构反常霍尔电阻随垂直外磁场的变化可反映绝缘磁性层磁矩的对应变化. 作为代表性结果, 图 2(a)—图 2(c) 分别展示了 2, 10 和 40 nm

HoIG 异质结构样品的反常霍尔电阻随垂直外磁场的变化, 原始数据中正常霍尔效应的贡献已通过减去直线背底而扣除. 从图 2(a)—图 2(c) 中可以看到三个样品在垂直磁场下都具有非常好的矩形回线, 表现为典型的易磁化特征, 因此这三个厚度的 HoIG 薄膜都具有强磁性和明显的垂直磁各向异性. 其他厚度的样品, 包括 3, 4, 7, 15, 20, 30, 40 nm 直到 60 nm HoIG 的样品都表现类似的特征, 实现了垂直磁各向异性, 矫顽力在 40 mT 以内; 不过, 100 nm HoIG 样品的霍尔回线有一定倾斜, 已不具备垂直易磁化的特征. 顺便指出, 10 nm 以上 HoIG 样品对于 VSM 测量, 铁磁磁矩信号具有一定的信噪比, 测试结果与 AHE 结果基本一致, 作为较好的代表性结果之一, 这里将 60 nm HoIG 薄膜的 VSM 测量垂直 M - H 回线显示在图 2(d) 的插图中. 这里还需要指出, 2 nm HoIG 超薄样品室温下具有铁磁性, 该厚度已经小于两个单胞层, 与以往报道的最薄 2 nm 的 YIG, TmIG 薄膜在室温下具有铁磁性的结果一致. 另一方面, 从图 2(a)—图 2(c) 中还可以看到不同样品的饱和反常霍尔电阻值存在一定差异, 将所有样品的饱和反常霍尔电阻结果总结在图 2(d) 中. 显然, 当 HoIG 厚度在 4 nm 及以上时, 反常霍尔电阻值在误差范围内基本相同, 约为 $5 \text{ m}\Omega$, 与高质量 YIG/Pt 异质结构的结果相当; 当 HoIG 厚度小于 4 nm 时, 反常霍尔电阻值开始缓慢减小, 3 和 2 nm HoIG/Pt 样品的反常霍尔电阻为厚 HoIG 样品的 80% 和 61%. 对于 SH-AHE, 异质结构界面自旋流输运效率, 即界面自旋混合电导虚部是一个重要因素^[24,25], 也就是说和界面电子交换作用密切相关的界面质量是一个重要因素; 同时, 由于 SH-AHE 是磁性绝缘体处于不同磁化方向时对重金属自旋霍尔效应产生的自旋流的吸收/反射效率不同所致, 意味着磁性绝缘体距离界面一定深度范围内的内部磁性是影响 SH-AHE 的另一个关键因素 (体效应). 对于 MPE-AHE 而言, Pt 的自旋极化完全来自磁性绝缘体界面交换作用的影响, 所以界面质量是影响 MPE-AHE 的惟一重要因素 (界面效应). 上述不同厚度 HoIG/Pt 的反常霍尔效应饱和值的结果表明, 对于 2—3 nm 超薄 HoIG 情形, 除薄膜厚度的影响外, HoIG 薄膜本身的磁性与异质结构的界面磁性和界面交换作用都可能有所下降. 事实上, 通过极化中子反射率研究发现, 以相同方法在 GGG

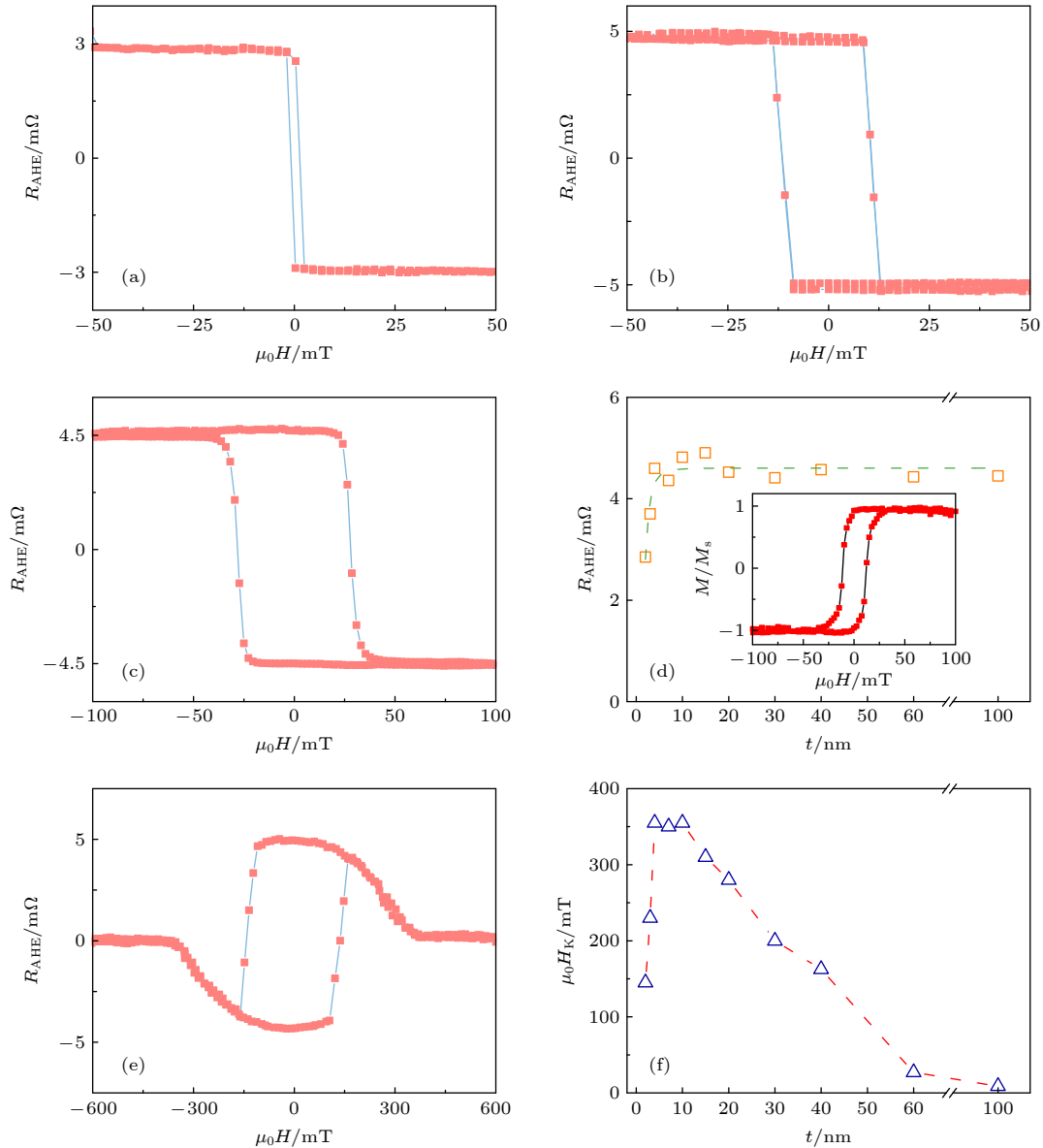


图 2 (a) 2 nm, (b) 10 nm 和 (c) 40 nm HoIG/Pt 的反常霍尔电阻随垂直外磁场的变化; (d) 饱和反常霍尔电阻随 HoIG 厚度的变化, 插图是 60 nm HoIG 的 VSM 测量磁滞回线; (e) 10 nm HoIG/Pt 的平面霍尔电阻随面内磁场的变化; (f) 不同厚度 HoIG 薄膜的有效垂直各向异性场

Fig. 2. The anomalous Hall resistance as a function of external field for (a) 2 nm, (b) 10 nm and (c) 40 nm HoIG/Pt heterostructure; (d) thickness dependence of the saturated anomalous Hall resistance. The inset is the M - H loop for the 60 nm HoIG film; (e) plane Hall resistance against the in-plane field for 10 nm HoIG/Pt; (f) thickness dependence of the effective perpendicular anisotropy field, the dashed line is the guide to the eye.

衬底上外延生长的 YIG 薄膜, 薄膜和衬底相接的界面存在约 2.5 nm 的扩散层, 并导致了 1.2 nm 的所谓磁性死层^[26]. HoIG 与 GYSGG 衬底之间应该也存在类似的界面扩散, 进而影响 3 和 2 nm 超薄膜的平均磁性甚至影响其上表面的磁性; 此外, 根据有限尺寸效应的规律, 超薄膜的磁性随厚度减薄而减弱^[27], 对于 2—3 nm 铁氧体薄膜, 有限尺寸效应的影响亦可能有所体现.

以上确定了生长在 GYSGG 衬底上的 2—60 nm

HoIG 高质量薄膜具有垂直磁各向异性, 并同时发现了 HoIG/Pt 异质结构反常霍尔效应的特点. 为了获得各薄膜垂直各向异性的定量信息, 依照平面霍尔效应 (PHE) 测量的几何构型, 即外磁场平行于膜面 (实际有 1° 左右夹角, 与霍尔电极大致平行), 测量了样品的平面霍尔电阻随磁场的变化. 当面内磁场为 0 时, 剩磁态样品的磁化矢量处在垂直膜面的状态, 霍尔电阻最大; 随着面内磁场增加, 磁矩往磁场方向倾斜导致垂直方向的磁化强度减

小, 霍尔电阻减小; 当磁场大于面内饱和磁场时, 磁化矢量沿膜面内, 霍尔电阻为零, 于是通过霍尔电阻趋近于零的磁场便可获得垂直薄膜的有效各向异性场. 图 2(e) 为 10 nm HoIG 异质结构样品的 PHE 曲线, 从图中可直接得出该样品的有效垂直各向异性场 $\mu_0 H_K$ 约为 355 mT. 这一结果小于前面的理论估计值, 可能与计算中所采用的各种参数与薄膜实际值有所偏差有关. 所有样品的 $\mu_0 H_K$ 测量结果总结在图 2(f) 中. 可以看出, HoIG 薄膜的 $\mu_0 H_K$ 在 4—10 nm 时显示出最佳的垂直磁各向异性; 膜厚超过 10 nm, 薄膜的外延应变、应力逐渐弛豫使得磁弹各向异性减小, $\mu_0 H_K$ 相应减小, 60 nm HoIG 的有效垂直各向异性场已下降至约 20 mT; 100 nm HoIG 薄膜的面内和垂直磁滞回线基本相似, $\mu_0 H_K$ 基本为零, 此时磁弹各向异性和形状各向异性基本相等. 对于 2 和 3 nm 的样品 $\mu_0 H_K$ 变小的情况, 可能是由于薄膜与衬底的扩散以及超薄膜磁性的有限尺寸效应, 导致内禀参数 M_s , λ_{111} , K_1 等已发生了明显改变.

进一步研究了 HoIG/Pt 的磁电阻效应. “磁性绝缘体/Pt” 异质结构的磁电阻效应通常被认为来自自旋霍尔效应, 简称自旋霍尔磁电阻 (SMR)^[23,24], 即异质结构中重金属由于自旋霍尔效应产生的自旋流被磁性绝缘体反射/吸收的效率受磁化方向影响, 进一步地逆自旋霍尔效应产生的附加电流导致重金属层的电阻依赖于磁化方向与电流方向的夹角. 理论上 SMR 可严格推导为

$$R = R_0 - \Delta R m_t^2, \quad (3)$$

式中 R_0 为重金属层基础电阻, ΔR 为磁化方向变化所引起的电阻变化量, m_t 为膜面内垂直于电流方向的磁化强度分量. 另一方面, 磁性金属都具有各向异性磁电阻 (AMR) 效应, 经典的宏观各向同性多晶体系 (晶粒结构统计上的各向同性) 的 AMR 表示为

$$R = R_{\perp} + \Delta R m_l^2, \quad (4)$$

这里 R_{\perp} 为电流垂直磁矩方向时的电阻, m_l 为平行于电流方向的磁化强度分量. 据此 (3) 式和 (4) 式, 以往相当多的研究人员认为 SMR 与 AMR 具有截然不同的全角度依赖关系, 并以遵循 (3) 式的实验结果作为 SMR 惟一机制的判据^[21,25]. 然而, 磁性金属薄膜由于生长织构、界面效应等因素, 其磁电阻表现出的角度依赖关系实际上比 (4) 式所

描述的要丰富得多, 有磁性金属薄膜体系的 AMR 效应完全符合 SMR 公式^[28,29]. 因此, 磁性绝缘体/Pt 异质结构的磁电阻效应即便完全遵从 SMR 公式也无法排除是否有磁近邻效应 (MPE) 导致的 AMR 的贡献. 测量了所有样品的电阻随磁场变化的曲线, 磁场方向包括平行于膜面且与电流方向垂直 (H_t), 平行于膜面沿电流方向 ($H_{//}$), 以及垂直于膜面 (H_{\perp}). 作为典型代表, 图 3(a)—图 3(c) 分别给出了 2, 10 和 40 nm HoIG 异质结构样品的电阻随磁场变化的曲线. 可以看出, 磁矩垂直于膜面时的电阻与磁矩平行于电流时的电阻相等, 同时, 磁矩垂直于膜面时的电阻大于磁矩在膜面内且与电流垂直时的电阻. 此外, 将平行于膜面的磁场固定在 360 mT, 将样品绕法线旋转 360° , 测量不同角度时的电阻, 观察到电阻随方位角余弦的平方而变化, 代表性结果如图 3(d) 的插图所示. 以上实验结果均符合 SMR 公式, 且所有样品的磁电阻测量都表现如此. 尽管这样, 为了避免物理解上的不完整或者有失偏颇, 我们将相关磁电阻称为“自旋霍尔/各向异性”磁电阻 (SMR/AMR). 最后, 将不同样品的磁电阻比值 $\Delta R/R$ 总结在图 3(d). 可以看出, 和 AHE 类似, 磁电阻比值在较厚的 HoIG 达到饱和, 但和 AHE 形成鲜明对照的是, 磁电阻比值到 7 nm 以下开始急剧减小, 4, 3 和 2 nm 样品的磁电阻比值为厚样品的 86%, 66%, 27%. SMR 与 SH-AHE 是同一个物理过程的两个不同侧面, 对于纯 SMR 而言, 界面自旋混合电导实部 (界面效应) 以及磁性绝缘体距离界面一定深度范围内的内部磁性 (体效应) 是影响 SMR 的两个关键因素^[21,25]; 而对于 MPE 引起的 AMR 而言, 本质上完全是一种界面效应. 对比 AHE 和磁电阻随 HoIG 厚度的变化, 尤其在超薄 HoIG 时两者的表现, “体效应”的作用对磁电阻较之对 AHE 似乎更为显著, 因此 MPE 对 AHE 的贡献可能占主导地位, 而磁电阻的主要贡献则可能来自 SMR. 从图 3(a) 关于 2 nm 样品在 H_t 下电阻的变化来看, 即使施加 600 mT 的外磁场, 似乎样品的电阻仍没有完全饱和, 而该样品的 H_K 只有 145 mT, 可能由于 2 nm HoIG 中有一定的扩散顺磁离子, 这些顺磁离子受大磁场的作用仍在继续影响超薄样品整体磁性, 从而影响 SMR.

最后研究了 HoIG/Pt 的纵向自旋塞贝克效应 (longitudinal spin Seebeck effect, SSE). “磁性绝

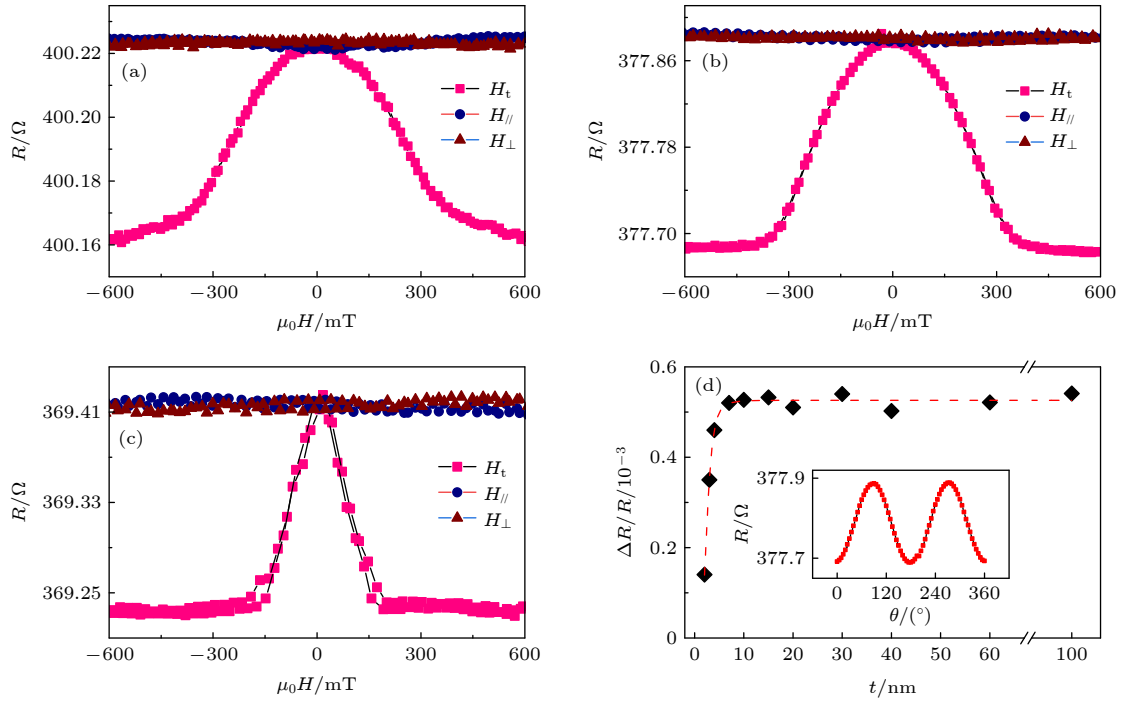


图 3 (a) 2 nm, (b) 10 nm 和 (c) 40 nm HoIG/Pt 的电阻随磁场变化的曲线, 包括平行于膜面且与电流方向垂直的磁场 (H_x), 平行于电流方向的磁场 (H_a), 以及垂直于膜面的磁场 (H_\perp); (d) HoIG/Pt 异质结构样品的磁电阻比值随 HoIG 厚度的变化, 插图 为 10 nm HoIG/3 nm Pt 样品在平行膜面 360 mT 外磁场下的电阻随电流与磁场方向夹角的变化

Fig. 3. Field dependence of resistance for the sample (a) 2 nm, (b) 10 nm and (c) 40 nm HoIG/Pt with the field parallel to the film plane and orthogonal to the current (H_x), parallel to the current (H_a), and perpendicular to the film plane (H_\perp); (d) thickness dependence of magnetoresistance ratio $\Delta R/R$ for the HoIG/Pt heterostructure. The inset is the angular dependence resistance for the 10 nm HoIG/3 nm Pt stack with the in-plane field magnitude fixed at 360 mT.

绝缘体/重金属”异质结构的 SSE 指磁性绝缘体在垂直温度梯度作用下, 磁矩非一致进动所产生的热磁振子自旋流, 被不断地输送到非磁重金属之中, 进而通过非金属层的逆自旋霍尔效应将自旋流转变为电流或开路电压。对于“磁性绝缘体/Pt”异质结构, 在温度梯度下, 磁近邻效应相关的 Pt 界面铁磁性将导致相对应的反常能斯特效应 (ANE), 且与自旋塞贝克信号完全同步, 所以目前所有实验结果原则上都是两者的累加。图 4(a)—图 4(c) 给出了三个典型 HoIG/Pt 样品在薄膜表面与衬底下表面温差为 13 K 的 LSSE 几何构型下测得的热电压 V_{th} 随面内磁场 H 变化的曲线。显然, 即使在超薄 HoIG 样品中, 同样观察到了可观的 SSE/ANE 电压 (V_{th} 的饱和值, 记作 $V_{SSE/ANE}$), 随着样品厚度的增加, $V_{SSE/ANE}$ 迅速增加。顺便指出, SSE/ANE 效应所产生的热电压 V_{th} 正比于沿面内磁场方向的磁化分量, 所以 V_{th} - H 曲线的形状和面内方向的磁滞回线相同。从垂直易磁化样品的 V_{th} - H 曲线所获得的饱和磁场同样对应于有效垂直各向异性场 H_K , 与前面平面霍尔效应测量的结果在误差范围

内是一致的。图 4(d) 给出了 $V_{SSE/ANE}$ 随 HoIG 厚度的变化。近年有研究指出, 纵向自旋塞贝克电压 V_{SSE} 随 YIG 薄膜厚度 (200 nm 至数十微米范围) 的变化满足指数规律^[30]:

$$V_{SSE} \propto [1 - \exp(-t/\xi)], \quad (5)$$

其中 t 即磁性层厚度, ξ 为非平衡磁振子的有效传播长度; 亦有研究者发现自旋塞贝克电压随磁性层厚度非单调变化, 但在 10—100 nm 厚度范围依旧是指数增加^[31]。虽然实验所获得的 $V_{SSE/ANE}$ 电压可能存在一定的反常能斯特效应的贡献, 我们仍将实验结果按照 (5) 式进行拟合, 发现所有数据点能被很好地拟合, 对于超薄膜也没有出现明显的偏离, 似乎反常能斯特对热电压信号的贡献比较有限, 且热激化磁振子的运动规律在超薄膜中仍然适用。 V_{SSE} 随磁性层厚度的变化是由于 SSE 中能量较低的低频磁振子的贡献最大, 而这些低频磁振子的热激发长度较大, 在厚度较薄时传播到界面的磁振子只有热激发长度较小 (距离异质结界面较近) 的高频磁振子的贡献, 所以 SSE 效应较小;

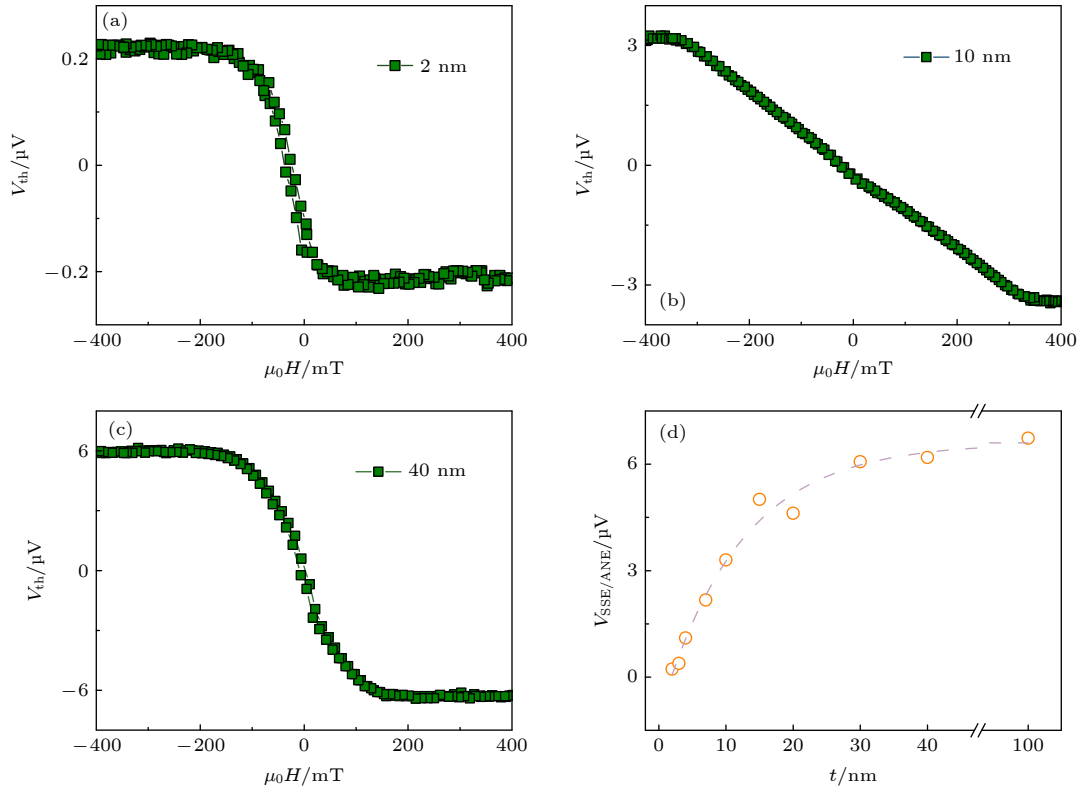


图 4 纵向自旋塞贝克几何构型下 (a) 2 nm, (b) 10 nm 和 (c) 40 nm HoIG/Pt 样品的热电压随面内磁场的变化; (d) 自旋塞贝克电压随 HoIG 厚度的变化, 图中虚线为根据 (5) 式的拟合曲线

Fig. 4. In-plane field dependence of thermal voltage for (a) 2 nm, (b) 10 nm and (c) 40 nm HoIG/Pt heterostructure under the longitudinal spin Seebeck geometry; (d) thickness dependence of spin-Seebeck voltage, the dashed line is fitting curve using Eq. (5).

随着厚度变大低频磁振子产生的自旋流开始传播到界面, 表现为 SSE 效应的增强; 当厚度进一步增大, 超过磁振子的平均传播距离时, SSE 效应逐渐达到饱和 [32]. 从数据拟合中得出 HoIG 样品的 ξ 为 11.9 ± 1.5 nm, 比液相外延微米 YIG 薄膜中的结果小了 2 个数量级 [30]. 众所周知, YIG 具有极小的 Gilbert 阻尼系数, 非平衡磁振子的传播距离远, 稀土离子尤其像 Ho 这样的重稀土离子取代 Y 大大增加了阻尼系数; 此外, 纳米薄膜尤其超薄膜中扩散的杂质原子都将进一步显著增大薄膜的阻尼系数, 所以 HoIG 纳米薄膜具有小的 ξ 是可以理解的.

4 总 结

在 GYSGG 衬底上通过磁控溅射外延生长了不同厚度的 HoIG 薄膜, 通过外延应变在最厚至 60 nm HoIG 中实现了垂直磁各向异性, 其中, 4—10 nm HoIG 样品具有最大的垂直磁各向异性, 有效各向异性场高达 350 mT, 另外, 2 nm 的超薄样

品也具有铁磁性和垂直磁各向异性. HoIG/Pt 异质结构具有可观的反常霍尔效应和磁电阻效应, 且磁电阻效应对绝缘体较薄时的体磁性相对更敏感, 可能磁近邻效应对反常霍尔效应的贡献占主导地位, 而磁电阻的主要贡献则可能来自自旋霍尔磁电阻. 此外, 自旋相关热电压随 HoIG 厚度减小以指数方式下降, 遵从热激化磁振子运动规律的自旋塞贝克效应是其主要贡献者. 本文结果表明 HoIG 纳米薄膜具有可调控的垂直磁各向异性, 厚度大于 4 nm 的 HoIG 异质结构具有高效的自旋界面交换作用, 是自旋电子学应用发展的一个重要候选材料.

参考文献

- [1] Wohlfarth E P (translated by Liu Z M) 1993 *Ferromagnetic Materials* (Vol. 2) (Beijing: Electronics Industry Press) pp1, 188, 225 (in Chinese) [沃尔法斯 E 著 (刘增民等译) 1993 铁磁材料(卷二)(北京: 电子工业出版社) 第1, 188, 225页]
- [2] Uchida K, Takahashi S, Harii K, Ieda J, Koshibae W, Ando K, Maekawa S and Saitoh E 2008 *Nature* **455** 778
- [3] Jaworski C M, Yang J, Mack S, Awschalom D D, Heremans J P, Myers R C, 2010 *Nat. Mater.* **9** 898

- [4] Lang M, montazeri M, Onbasli M C, Kou X F, Fan Y, Upadhyaya P, Yao K, Liu F, Jiang Y, Jiang W J, Wong K L, Yu G Q, Tang J S, Nie T X, He L, Schwartz B N, Wang Y, Ross C A and Wang K L 2014 *Nano Lett.* **14** 3459
- [5] Jiang Z, Chang C Z, Tang C, Wei P, Moodera J S, Shi J 2015 *Nano Lett.* **15** 5835
- [6] Liu L, Lee O J, Gudmundsen T, Ralph D, Buhrman R 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 096602
- [7] Li P, Liu T, Chang H, Kalitsov A, Zhang W, Csaba G, Li W, Richardson D, Demann A, Rimal G, Dey H, Jiang J S, porod W, Field S B, Tang J, Marconi M C, Hoffmann A, Mryasov O, Wu M Z 2016 *Nat. Commun.* **7** 12688
- [8] Avci C O, Rosenberg E, Baumgartner, Beran L, Quindeau A, Gambardella P, Ross C A, Beach C S D 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 072406
- [9] Kamada O, Nakaya T and Higuchi S 2005 *Sens. Actuators, A* **119** 345
- [10] Xiao J and Bauer G E W 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 217204
- [11] Lee S W and Lee K J 2016 *Proc. IEEE* **104** 1831
- [12] Guo Y C 2014 *Ferromagnetics* (Beijing: Peking University Press) p171 (in Chinese) [郭贻诚 著 2014 铁磁学 (北京: 北京大学出版社) 第171页]
- [13] Hao J X, Yang Q H, Zhang H W, et al. 2018 *Acta. Phys. Sin.* **67** 117801 (in Chinese) [郝俊祥, 杨青慧, 张怀武, 等 2018 物理学报 **67** 117801]
- [14] Chen J L, Wang C T, Liu C P, 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 212401
- [15] Li G, Bai H, Su J 2019 *APL Mater.* **7** 041104
- [16] Kubota M, Tsukazaki A, Kagawa F, Shibuya K, Tokunaga Y, Kawasaki M, Tokura Y 2012 *Appl. Phys. Express.* **5** 103002
- [17] Rosenberg E R, Beran L, Avci C O, Zeledon C, Song B, Gonzalez-Fuentes C, Mendil J, Gambardella P, Veis M, Garcia C, Beach G S D, Ross C A 2018 *Phys. Rev. M* **2** 094405
- [18] Yamahara H, Mikami M, Seki M, Tabata H 2011 *J.M.M.M.* **323** 3143
- [19] Bauer J J, Rosenberg E R, Kundu S, Mkhoyan K A, Quarterman P, Grutter A J, Kirby B J, Borchers J A, Ross C A 2020 *Adv. Electron. Mater.* **6** 1900820
- [20] Zanjani S M, Onbasli M C 2019 *AIP Adv.* **9** 035024
- [21] Nakayama H, Althammer M, Chen Y T, Uchida K, Kajiwara Y, Kikuchi D, Ohtani T, Geprags S, Opel M 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 206601
- [22] Lu Y M, Choi Y, Ortega C M, Cheng X M, Cai J W, Huang S Y, Sun L, Chien C L 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 147207
- [23] Tang C, Sellappan P, Liu Y, Xu Y, Garay J E, Shi J 2016 *Phys. Rev. B* **94** 140403(R)
- [24] Aldosary M, Li J, Tang C, Xu Y, Zheng J-G, Bozhilov K N, Shi J 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 242401
- [25] Chen Y-T, Takahashi S, Nakayama H, Althammer M, Goennenwein S T B, Saitoh E, Bauer G E W 2013 *Phys. Rev. B* **87** 144411
- [26] Bai H, Zhan X Z, Li G, Su J, Zhu Z Z, Zhang Y, Zhu T, Cai J W 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 182401
- [27] Bergholz R, Gradmann U 1984 *J.M.M.M.* **45** 389
- [28] Zhou L K, Zhang Y, Gu L, Cai J W, Sun L 2016 *Phys. Rev. B* **93** 075309
- [29] Philippi-Kobs A, Farhadi A, Matheis L, Chuvilin L A, Oepen H P 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 137201
- [30] Guo E-J, CraMer J, Kehlberger A, Ferguson C A, MacLaren D A, Jakob G, Klaul M 2016 *Phys. Rev. X* **6** 031012
- [31] Prakash A, Flebus B, Brangham J, Yang F, Tserkovnyak, Heremans J P 2018 *Phys. Rev. B* **97** 020408
- [32] Kikkawa T, Uchida K, Daimon S, Qiu Z, Shiomi Y, Saitoh E 2015 *Phys. Rev. B* **92** 064413

Epitaxial growth of $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ films with perpendicular magnetic anisotropy and spin transport properties in $\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}/\text{Pt}$ heterostructures*

Yang Meng¹⁾²⁾ Bai He²⁾ Li Gang²⁾ Zhu Zhao-Zhao²⁾ Zhu Yun^{1)†}
Su Jian²⁾ Cai Jian-Wang²⁾

1) (*School of Physics and Materials Science, Tianjin Normal University, Tianjin 300387, China*)

2) (*State Key Laboratory of Magnetism, Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

(Received 20 October 2020; revised manuscript received 5 December 2020)

Abstract

Rare-earth iron garnet films with perpendicular magnetic anisotropy could open new perspectives for spintronics. Holmium iron garnet ($\text{Ho}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, HoIG) films with thickness ranging from 2 to 100 nm are epitaxially grown on (111) orientated gadolinium gallium garnet single crystal substrate doped with yttrium and scandium ($\text{Gd}_{0.63}\text{Y}_{2.37}\text{Sc}_2\text{Ga}_3\text{O}_{12}$, GYSGG) by ultra-high vacuum magnetron sputtering. A 3-nm Pt film is further deposited on each of the HoIG films. The magnetic anisotropy and magneto-transport properties of heterostructures at room temperature are investigated. It is shown that the HoIG film as thin as 2 nm (less than two unit cells in thickness) exhibits the ferromagnetic properties at room temperature, and perpendicular magnetic anisotropy is achieved in the 2-60 nm thick films, and a maximum effective perpendicular anisotropy field reaches 350 mT due to the strain induced magnetoelastic anisotropy. The HoIG/Pt heterostructure shows significant anomalous Hall effect (AHE) and appreciable spin-Hall magnetoresistance (SMR) and/or anisotropic magnetoresistance (AMR). Remarkably, the AHE starts to decline gradually when the HoIG thickness is less than 4 nm, but the magnetoresistance decreases rapidly with the HoIG layer becoming less than 7 nm in thickness. The fact that the AHE in the heterostructure is less sensitive to the HoIG thickness suggests that the interface effect is more dominant in the AHE mechanism, whereas the bulk magnetic properties of the HoIG plays a more important role for the observed magnetoresistance. In addition, the spin Seebeck effect decreases exponentially with the decrease of HoIG thickness till the ultrathin limit, which was previously validated in the micrometer-thick YIG/Pt stacks in the frame of thermally excited magnon accumulation and propagation. The present results show that the nanometer HoIG/Pt heterostructure with tunable perpendicular magnetic anisotropy and efficient interfacial spin exchange interaction could be a promising candidate for insulating magnet based spintronic devices.

Keywords: perpendicular magnetic anisotropy, anomalous Hall effect, spin-Hall magnetoresistance

PACS: 75.70.-i, 75.30.Gw, 72.25.-b

DOI: 10.7498/aps.70.20201737

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant Nos. 2016YFA0300804, 2018YFB0703500) and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11674379).

† Corresponding author. E-mail: wdxzy@tjnu.edu.cn