

05,03

## Влияние распределения энергии магнитной анизотропии кластеров MnSb на спонтанное перемагничивание тонких пленок GaMnSb

© А.И. Дмитриев<sup>1</sup>, А.А. Филатов<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Институт проблем химической физики РАН, Черноголовка, Россия

<sup>2</sup> Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

E-mail: aid@icp.ac.ru

(Поступила в Редакцию 6 апреля 2016 г.)

Измерены температурные  $m(T)$  и временные  $m(t)$  зависимости магнитного момента тонких пленок GaMnSb, содержащих кластеры MnSb. Зависимости  $m(t)$  спрямляются в полулогарифмических координатах  $m(\ln t)$ . Исследованы температурные зависимости магнитной вязкости  $S(T)$ , соответствующей угловому коэффициенту прямых  $m(\ln t)$ . Обнаружено, что характер зависимостей  $S(T)$  определяется логнормальным распределением энергии магнитной анизотропии кластеров MnSb. Установлено, что вид зависимостей  $m(T)$ , измеренных после охлаждения пленок в нулевом магнитном поле (ZFC) и магнитном поле  $H = 10$  kOe (FC), также определяется логнормальным распределением энергии магнитной анизотропии кластеров MnSb.

Работа поддержана грантом Президента РФ МК-5754.2016.3.

### 1. Введение

Разбавленные магнитные полупроводники — материал с высокой степенью спиновой поляризации носителей заряда, на основе которого могут быть созданы приборы спинтроники. Однако величина косвенного обмена, поддерживающего спин-поляризованное состояние, настолько мала, что соответствующие температуры Кюри значительно ниже комнатной. Причина заключается в плохой растворимости примеси переходных металлов в полупроводниковой матрице и, как следствие, образовании различных кластеров вторичной фазы [1–9]. Присутствие этих кластеров, зачастую ферромагнитных при комнатной температуре, обычно считалось вредным и приводило к различного рода ошибкам в интерпретации магнитных свойств таких материалов. В удачных случаях кластерный ферромагнетизм удавалось выделить и обнаружить, что он никоим образом не связан с подсистемой диспергированных ионов. В качестве примеров можно привести разбавленные магнитные полупроводники GaFeN с кластерами Fe<sub>3</sub>N [1,2], GeMn с кластерами Mn<sub>5</sub>Ge<sub>3</sub> [3,4], GaMnSb с кластерами MnSb [5–7], GaMnAs с кластерами MnAs [8,9]. Можно было бы привести еще много примеров. Сегодня сообщения о ферромагнетизме при комнатной температуре в разбавленных магнитных полупроводниках, подобных приведенным выше, уже не вызывают энтузиазма, а порождают лишь скепсис и вынуждают тщательно искать, какие же кластеры на этот раз ответственны за ферромагнетизм. В настоящее время рекордсменом по температуре Кюри является GaMnAs ( $T_C = 110$  K), в то время как для других разбавленных магнитных полупроводников  $T_C$  существенно ниже. Например, в GaMnSb теоретически предсказываемая  $T_C = 40$  K, в то время как экспериментально регистрируемое значение  $T_C$  в

тонких пленках, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии, не превышает 25 K [5–7]. И несмотря на то что GaMnSb является в некотором смысле антирекордсменом, мы обратились именно к нему. Дело в том, что недавно появились свидетельства того, что в тонких пленках GaMnSb, выращенных методом импульсного лазерного осаждения, поляризация дырок может быть чувствительна к намагниченности кластеров MnSb [10]. В отличие от образцов, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии, для которых отрицательный аномальный эффект Холла наблюдался до температур 30 K [5–7], в образцах, выращенных методом импульсного лазерного осаждения, обнаружен положительный эффект Холла с гистерезисом вплоть до комнатных температур [10]. Аномальный эффект Холла является свидетельством спиновой поляризации носителей заряда и чувствительности ее к намагниченности образцов. Ввиду того что дальний магнитный порядок при комнатной температуре в образцах невозможен, авторы [10] интерпретировали наблюдаемый эффект как поляризацию носителей заряда, туннелирующих через барьер Шоттки MnSb–GaMnSb. Однако данная работа скорее обозначила ряд вопросов, чем дала ответы на них. Авторы [10] утверждают, что наблюдаемый аномальный эффект Холла наблюдается только в образцах с высокой концентрацией носителей вследствие того, что именно в этом случае высота барьера Шоттки понижается, и дырки могут эффективно туннелировать в кластер. В этом случае понижение температуры, приводящее к уменьшению концентрации носителей, должно было бы подавлять аномальный эффект Холла. При этом авторы наблюдают его вплоть до температур 77 K. Осталась без систематического прямого экспериментального исследования и обсуждения ферромагнитная подсистема

MnSb, которая и ответственна за спиновую поляризацию носителей и т.д. В работах [11,12] во многом был восполнен существующий пробел: определены основные магнитные характеристики тонких пленок (коэрцитивная сила, температуры блокировки, константы анизотропии и т.д.), исследованы микроволновое магнетосопротивление и зависимость намагниченности от концентрации носителей заряда.

В настоящей работе исследованы температурные  $m(T)$  и временные  $m(t)$  зависимости магнитного момента тонких пленок GaMnSb, содержащих кластеры MnSb. Целью работы являлся поиск влияния распределения кластеров MnSb по размерам на спонтанное перемагничивание тонких пленок GaMnSb.

## 2. Методика

Пленки GaMnSb толщиной 90 nm и площадью  $\sim 1 \text{ cm}^2$  были получены из системы GaSb–MnSb эвтектического состава методом импульсного лазерного осаждения в условиях высокого вакуума при температуре  $100^\circ\text{C}$ . В качестве подложек использовался монокристаллический  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . После напыления образец был подвергнут отжигу при температуре  $350^\circ\text{C}$  в течение 30 min. Структура и состав тонких пленок контролировались сканирующим зондовым микроскопом и сканирующим электронным микроскопом. Химический состав в приповерхностных слоях пленок был определен методом энергодисперсионной спектроскопии. Изображение поверхности тонкой пленки GaMnSb, полученное с помощью магнитно-силового микроскопа (рис. 1), показывает, что пленки имеют магнитные нановключения, т.е. являются гранулированными. Подробно методика изготовления и аттестации образца описана ранее [11–14].

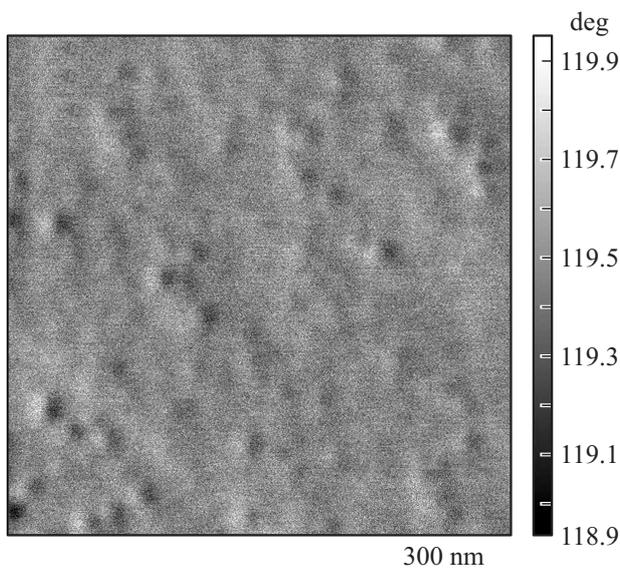


Рис. 1. Изображение поверхности тонкой пленки GaMnSb, полученное с помощью магнитно-силового микроскопа.

С помощью СКВИД (SQUID)-магнитометра (MPMS 5XL Quantum Design) были выполнены стандартные измерения температурных зависимостей магнитного момента образцов  $m(T)$  в интервале температур  $T = 2\text{--}390 \text{ K}$ . С помощью СКВИД-магнитометра также были получены временные зависимости магнитного момента  $m(t)$  в интервале температур  $T = 2\text{--}390 \text{ K}$ .

## 3. Результаты и обсуждение

3.1. Температурные зависимости магнитного момента. На рис. 2, а представлены температурные зависимости магнитного момента тонкой пленки GaMnSb, охлажденной в нулевом магнитном поле (ZFC) и магнитном поле  $H = 10 \text{ kOe}$  (FC), измеренные в магнитном поле  $H = 250 \text{ Oe}$ . Магнитный момент насыщения, соответствующий зависимости FC, достигает значения  $m_S \approx 3.5 \mu_B$  при  $T = 2 \text{ K}$ . Величина магнитного момента насыщения близка к соответствующему значению  $3.57 \mu_B$  для стехиометрического сплава MnSb [15].

Вид зависимостей  $m_{ZFC}$  и  $m_{FC}$  определяется распределением кластеров MnSb по размерам (по энергиям магнитной анизотропии) [16]

$$m_{ZFC} = \frac{HM_S^2}{3k_B T} \int_0^{V_{lim}} V^2 \rho(V) dV + \frac{HM_S^2}{3K} \int_{V_{lim}}^{\infty} V \rho(V) dV, \quad (1)$$

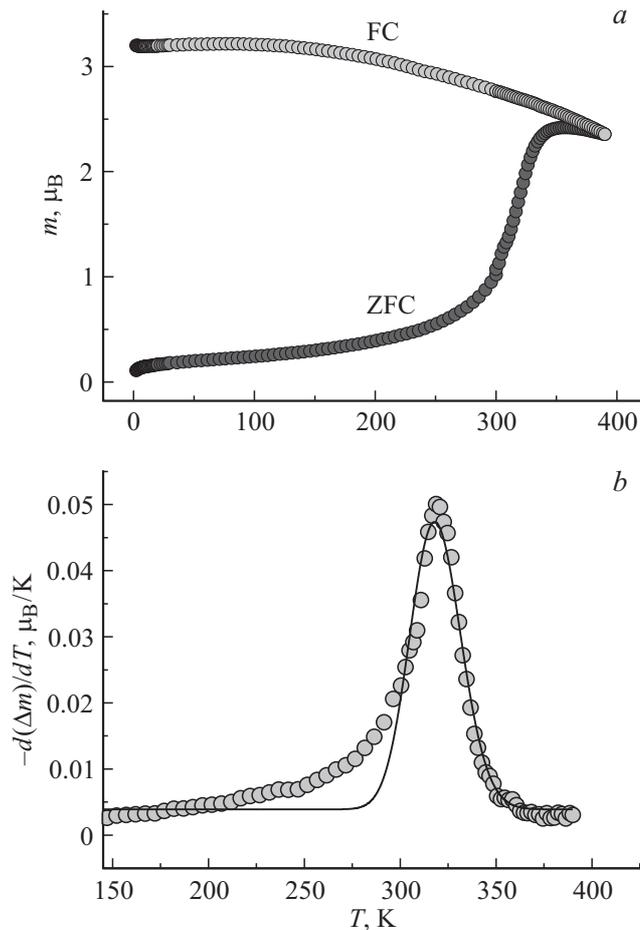
$$m_{FC} = \frac{HM_S^2}{3k_B T} \int_0^{V_{lim}} V^2 \rho(V) dV + \frac{HM_S^2}{3K} \int_{V_{lim}}^{\infty} \alpha V \rho(V) dV, \quad (2)$$

где  $H$  — напряженность магнитного поля,  $M_S$  — намагниченность насыщения,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура,  $V$  — объем кластеров,  $K$  — константа магнитной анизотропии,  $V_{lim} = \gamma k_B T / K$  — значение объема, выше которого кластеры находятся в заблокированном состоянии; коэффициент  $\alpha$  определяется выражением  $\alpha = 0.9283 \ln(v_0 K \langle V \rangle / k_B v_T) - 3.96$ , коэффициент  $\gamma$  определяется формулой  $\gamma = 0.9609 \ln(v_0 T_{max} / v_T) - 1.629$  (здесь  $v_0$  — характерная частота термических флуктуаций,  $v_T$  — скорость изменения температуры,  $\langle V \rangle$  — средний объем,  $T_{max}$  — температура максимума на зависимости ZFC). Распределение кластеров по объему задается логнормальной функцией

$$\rho(V) = \frac{1}{V \sigma \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2} \left[\frac{\ln \frac{V}{V_m}}{\sigma}\right]^2\right), \quad (3)$$

где  $\sigma$  — дисперсия,  $V_m$  — медианный объем ( $V_m = 8 \langle V \rangle \exp(-9\sigma^2/2)$ ).

Для удобства анализа экспериментальных данных упростим вид выражений (1) и (2). Для этого запишем выражение для производной по температуре  $T$  разности



**Рис. 2.** *a)* Температурные зависимости магнитного момента образца, охлажденного в нулевом магнитном поле (ZFC) и магнитном поле  $H = 10$  kOe (FC), измеренные в магнитном поле  $H = 250$  Oe. *b)* Температурная зависимость производной  $d(\Delta m)/dT$ . Сплошной линией показана аппроксимация.

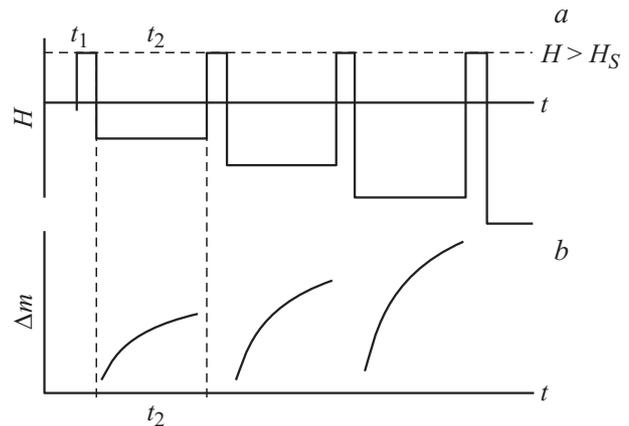
магнитных моментов  $\Delta m = m_{FC} - m_{ZFC}$ , предварительно сделав в интеграле замену переменных  $V = \gamma k_B T/K$ :

$$\frac{d(\Delta m)}{dT} = \frac{HM_S^2}{3K} (\alpha - 1) \left(\frac{\gamma k_B}{K}\right)^2 T \rho \left(\frac{\gamma k_B T}{K}\right). \quad (4)$$

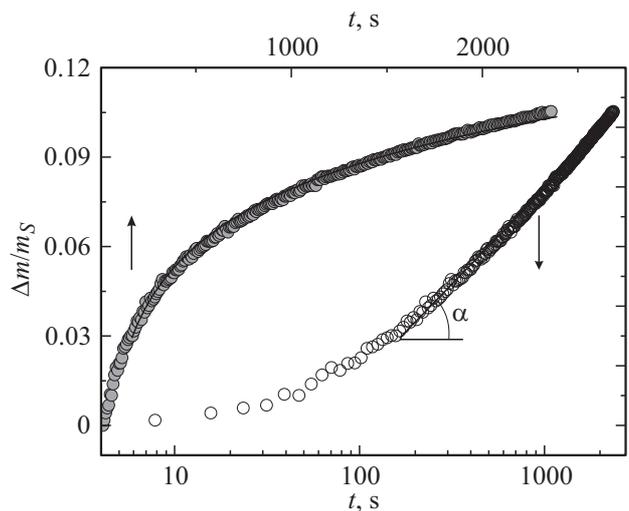
На рис. 2, *b* представлены температурная зависимость производной  $d(\Delta m)/dT$  и ее аппроксимация выражением (4). Немонотонная зависимость  $d(\Delta m)/dT$  обусловлена логнормальным распределением кластеров MnSb по размерам (множителем  $\rho(\gamma k_B T/K)$ ) в уравнении (4). Из аппроксимации удалось восстановить вид зависимости  $\rho(E_a)$  (здесь  $E_a = KV$  — энергия магнитной анизотропии), которая далее сопоставлена с распределением кластеров по размерам (диаметрам  $D$ ), полученным из данных магнитно-силовой микроскопии.

3.2. Временные зависимости магнитного момента, температурная зависимость магнитной вязкости. На рис. 3, *a* представлена схема переключения внешнего магнитного поля в экспериментах по измерению зависимостей  $m(t)$ . Сначала

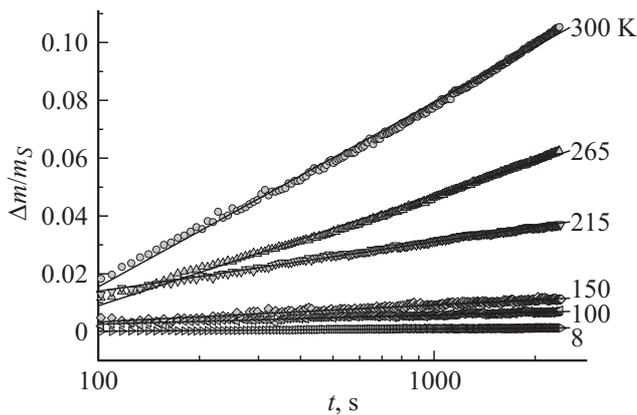
образец намагничивался в магнитном поле  $H = 2$  kOe (превышающем поле насыщения). Время  $t_1$  экспозиции образца в магнитном поле составляло 300 s. После выдержки образца в магнитном поле  $H = 2$  kOe в течение  $t_1 = 300$  s включалось поле, направленное против вектора магнитного момента образца. Время развертки поля составляло около 90 s. После установки отрицательного магнитного поля происходила запись временной зависи-



**Рис. 3.** *a)* Схема переключения внешнего магнитного поля в экспериментах по измерению временных зависимостей магнитного момента. *b)* Схематическое изображение изменения магнитного момента тонких пленок. Отмечены промежутки времен:  $t_1 = 300$  s — длительность экспозиции образцов в магнитном поле  $H = 2$  kOe (превышающем поле насыщения  $H_S$ ),  $t_2 = 2400$  s — длительность измерения временных зависимостей магнитного момента образцов.



**Рис. 4.** Временная зависимость изменения магнитного момента  $\Delta m(t)$ , выраженного в единицах магнитного момента насыщения  $m_S$ , при температуре  $T = 300$  K в магнитном поле  $H = 250$  Oe, направленном против вектора магнитного момента образца (темные символы). Светлыми символами показана та же зависимость в полулогарифмических координатах. Тангенс угла  $\alpha$ , отмеченного на зависимости  $\Delta m(t)$  в полулогарифмических координатах, соответствует магнитной вязкости  $S$ . Сплошными линиями показаны аппроксимации.



**Рис. 5.** Временные зависимости изменения магнитного момента  $\Delta m(t)$ , выраженного в единицах магнитного момента насыщения  $m_s$ , при различных температурах в магнитном поле  $H = 250$  Ое, направленном против вектора магнитного момента образца, в полулогарифмических координатах. Сплошными линиями показаны аппроксимации.

мости магнитного момента. Длительность  $t_2$  измерения зависимостей  $m(t)$  составляла 2400 с. Было выполнено около десяти циклов перемагничивания при различных температурах (2–390 К). На рис. 3, *b* показано схематическое изображение изменения магнитного момента образца.

На рис. 4 показана зависимость  $\Delta m(t)$  при температуре  $T = 300$  К в магнитном поле  $H = 250$  Ое, направленном против вектора магнитного момента образца, в линейной и логарифмической временных шкалах. Из рис. 4 видно, что  $\Delta m(t)$  спрямляется в полулогарифмических координатах. Сплошной линией показана аппроксимация выражением

$$\frac{\Delta m}{m_s} \sim S \ln t. \tag{5}$$

Тангенс угла  $\alpha$ , отмеченного на зависимости  $\Delta m(\ln t)$ , соответствует магнитной вязкости  $S = dM/d(\ln t)$ .

На рис. 5 показаны зависимости  $\Delta m(t)$  в полулогарифмических координатах при различных температурах и их аппроксимации функцией (5). Температурная зависимость магнитной вязкости, выраженной в единицах магнитного момента насыщения  $m_s$ , изображена на рис. 6.

С учетом распределения кластеров по размерам температурная зависимость  $S(T)$  в заданном магнитном поле примет вид [17,18]

$$\frac{S(T)}{m_s} = \frac{T}{25T_B} \rho(V_C)V_C, \tag{6}$$

где  $T_B$  — температура блокировки кластеров, соответствующая медиане распределения кластеров по размерам,  $V_C = 25k_B T/K$  — критический объем. При заданной температуре только те кластеры участвуют в релаксации за счет термических флуктуаций, объем которых равен  $V_C$ . Для кластеров меньшего объема процесс релаксации уже завершился за время развертки поля,

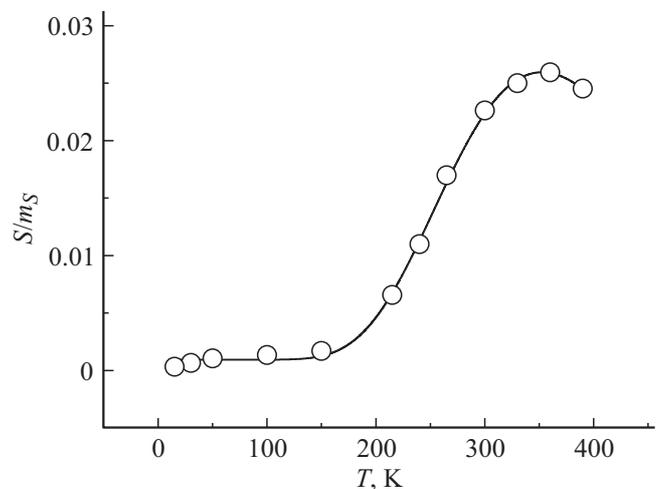
а кластеры большего объема не участвуют в процессе релаксации, так как для них энергетический барьер, разделяющий два направления намагниченности, слишком велик по сравнению с энергией термических флуктуаций. Например, в случае равномерного распределения  $f(V_C) = 1/V_C$  температурная зависимость  $S(T)$ , согласно (6), должна линейно зависеть от температуры [17], в случае  $f(V_C) = 1/V_C^2$  магнитная вязкость температурно-независима [17], а в случае логнормального распределения  $f(V_C)$  зависимость  $S(T)$  должна иметь вид

$$\frac{S(T)}{m_s} = \frac{T}{25T_B} \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2} \left[\frac{\ln \frac{T}{T_B}}{\sigma}\right]^2\right). \tag{7}$$

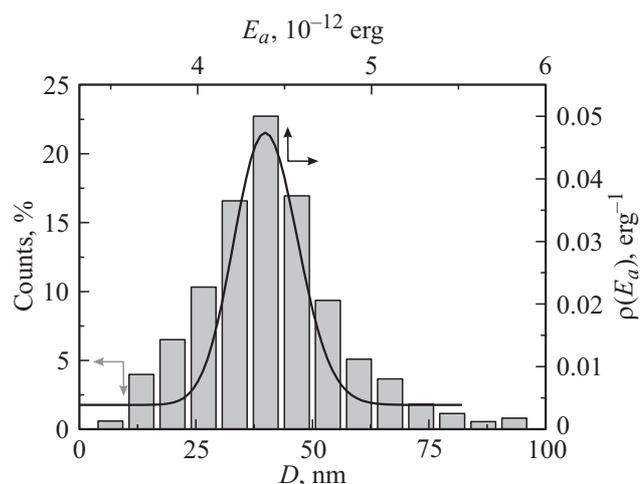
На рис. 6 сплошной линией показана аппроксимация зависимости  $S(T)$  функцией (7). Из рис. 6 следует, что температурная зависимость магнитной вязкости определяется логнормальным распределением энергии магнитной анизотропии кластеров MnSb.

На рис. 7 представлено распределение кластеров MnSb по размерам, полученное на основе магнитно-силовой микроскопии (рис. 1), а также кривая  $\rho(E_a)$ , полученная в результате анализа температурных  $m(T)$  и временных  $m(t)$  зависимостей магнитного момента тонких пленок GaMnSb. Их корреляция свидетельствует о том, что зависимости  $m(T)$ , измеренные после охлаждения пленок в нулевом магнитном поле (ZFC) и магнитном поле  $H = 10$  кОе (FC), а также температурные зависимости магнитной вязкости  $S(T)$  определяются логнормальным распределением кластеров MnSb по размерам (энергии магнитной анизотропии).

Сопоставление зависимости  $\rho(V)$ , полученной с помощью данных магнитно-силовой микроскопии, с зависимостью  $\rho(E_a)$ , определенной в результате анализа кривых  $m(T)$  и  $m(t)$ , позволило установить



**Рис. 6.** Температурная зависимость магнитной вязкости  $S$ , выраженной в единицах магнитного момента насыщения  $m_s$ , в магнитном поле  $H = 250$  Ое. Сплошной линией показана аппроксимация.



**Рис. 7.** Распределение кластеров MnSb по размерам, полученное на основе данных магнитно-силовой микроскопии, а также зависимость  $\rho(E_a)$ , полученная в результате анализа температурных и временных зависимостей магнитного момента тонких пленок GaMnSb.

константу магнитной анизотропии  $K = 5 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3$ . Определенное здесь значение  $K$  близко к значению  $K = 14 \cdot 10^4 \text{ erg/cm}^3$ , найденному ранее для этого же образца с помощью ферромагнитного резонанса [11]. Завышенное значение, полученное в работе [11], вероятно, связано с тем, что для анализа ориентационных зависимостей резонансного поля использовались формулы Киттеля для сплошной намагниченной тонкой пластины, что не совсем отвечает гранулированной структуре образца, даже с учетом диполь-дипольного взаимодействия.

#### 4. Заключение

Установлено, что магнитные свойства тонких пленок GaMnSb определяются кластерами вторичной фазы MnSb, внедренными в тонкие пленки. Обнаружена корреляция между функцией распределения кластеров MnSb по размерам, полученной на основе данных магнитно-силовой микроскопии, и функцией распределения кластеров MnSb по энергии магнитной анизотропии, полученной в результате анализа температурных  $m(T)$  и временных  $m(t)$  зависимостей магнитного момента тонких пленок GaMnSb. Их корреляция указывает на то, что температурные зависимости магнитного момента  $m(T)$  и магнитной вязкости  $S(T)$  определяются логнормальным распределением кластеров MnSb по размерам (энергии магнитной анизотропии).

Авторы признательны Б.А. Аронзону за предоставление образцов и данные магнитно-силовой микроскопии. А.И. Дмитриев благодарен Р.Б. Моргунову — учителю, многолетней работой с которым обусловлен интерес к теме, обсуждаемой в статье.

#### Список литературы

- [1] M. Rovezzi, F. D'Acapito, A. Navarro-Quezada, B. Faina, T. Li, A. Bonanni, F. Filippone, A.A. Bonapasta, T. Dietl. *Phys. Rev. B* **79**, 195209 (2009).
- [2] A. Bonanni, A. Navarro-Quezada, T. Li, M. Wegscheider, Z. Matěj, V. Holý, R.T. Lechner, G. Bauer, M. Rovezzi, F. D'Acapito, M. Kiećana, M. Sawicki, T. Dietl. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 135502 (2008).
- [3] Р.Б. Моргунов, А.И. Дмитриев. *ФТТ* **51**, 1873 (2009).
- [4] А.И. Дмитриев, Р.Б. Моргунов, О.Л. Казакова, Y. Tanimoto. *ЖЭТФ* **135**, 1134 (2009).
- [5] F. Matsukura, E. Abe, H. Ohno. *J. Appl. Phys.* **87**, 6442 (2000).
- [6] F. Matsukura, E. Abe, Y. Ohno, H. Ohno. *Appl. Surf. Sci.* **159–160**, 265 (2000).
- [7] E. Abe, F. Matsukura, H. Yasuda, Y. Ohno, H. Ohno. *Physica E* **7**, 981 (2000).
- [8] А.И. Дмитриев, А.Д. Таланцев, С.В. Зайцев, Ю.А. Данилов, М.В. Дорохин, Б.Н. Звонков, О.В. Коплак, Р.Б. Моргунов. *ЖЭТФ* **140**, 158 (2011).
- [9] А.И. Дмитриев, Р.Б. Моргунов, С.В. Зайцев. *ЖЭТФ* **139**, 367 (2011).
- [10] В.В. Рьльков, Б.А. Аронзон, Ю.А. Данилов, Ю.Н. Дроздов, В.П. Лесников, К.И. Маслаков, В.В. Подольский. *ЖЭТФ* **127**, 838 (2005).
- [11] А.Д. Таланцев, О.В. Коплак, Р.Б. Моргунов. *ФТТ* **57**, 307 (2015).
- [12] О.В. Коплак, А.А. Поляков, А.Б. Давыдов, Р.Б. Моргунов, А.Д. Таланцев, А.В. Кочура, И.В. Федорченко, О.А. Новодворский, А.В. Шорохова, Б.А. Аронзон. *ЖЭТФ* **147**, 1170 (2015).
- [13] С.Ф. Маренкин, О.А. Новодворский, А.В. Шорохова, А.Б. Давыдов, Б.А. Аронзон, А.В. Кочура, И.В. Федорченко, О.Д. Храмова, А.В. Тимофеев. *Неорган. материалы* **50**, 973 (2014).
- [14] A.A. Lotin, O.A. Novodvorsky, L.S. Parshina, E.V. Khaydukov, D.A. Zuev, O.D. Khramova, V.Ya. Panchenko. *Appl. Phys. B* **104**, 565 (2011).
- [15] R. Coehoorn, C. Haas, R.A. Groot. *Phys. Rev. B* **31**, 1980 (1985).
- [16] F. Tournus, A. Tamion. *J. Magn. Magn. Mater.* **323**, 1118 (2011).
- [17] J. Tejada, X.X. Zhang, J.M. Hernandez. In: *Proc. of NATO ASI / Ed. by G.C. Hadjipanayis. Kluwer Academic Publ., Amsterdam (1997). V. 338. P. 221.*
- [18] А.И. Дмитриев, А.Д. Таланцев, О.В. Коплак, Р.Б. Моргунов. *J. Appl. Phys.* **119**, 073905 (2016).