## 05,03

# Общность процессов спонтанного и вынужденного перемагничивания кластеров MnSb, внедренных в тонкие пленки 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 24 января 2017 г. В окончательной редакции 14 февраля 2017 г.)

Обнаружена общность процессов спонтанного и вынужденного перемагничивания кластеров MnSb, внедренных в тонкие пленки GaMnSb. Родство термоактивационных и полевых процессов перемагничивания экспериментально выражается в том, что максимум на полевых зависимостях магнитной вязкости S(H) совпадает с коэрцитивной силой  $H_C$  образца. Анализ этого экспериментального факта позволил получить формулу, устанавливающую связь  $H_C$  с параметрами модели, описывающей зависимости S(H). Полученная формула идентична известному закону Кнеллера, определяющему температурную зависимость  $H_C(T)$  невзаимодействующих суперпарамагнитных наночастиц.

Работа поддержана грантом Президента РФ МК-5754.2016.3.

DOI: 10.21883/FTT.2017.09.44841.012

#### 1. Введение

В работах [1,2] было исследовано спонтанное перемагничивание (магнитная вязкость) тонких пленок GaMnSb, содержащих кластеры MnSb. Интерес к этим образцам обусловлен спиновой поляризацией носителей заряда, индуцированной намагниченностью кластеров MnSb [3]. Зависимости магнитной вязкости от напряженности магнитного поля S(H), соответствующей угловому коэффициенту временных зависимостей магнитного момента в полулогарифмических координатах, определяются логнормальным распределением энергии магнитной анизотропии кластеров MnSb [2]. Максимум кривых S(H), построенных при различных температурах, совпадает с коэрцитивной силой образцов (рис. 1). В работе [2] этот экспериментальный факт не получил должного обсуждения и анализа. Настоящая работа направлена на то, чтобы восполнить этот пробел.

Ранее взаимосвязь спонтанного и вынужденного перемагничивания, выражающаяся в зависимости коэрцитивной силы  $H_C$  от флуктуационного поля  $H_f$ , была установлена для постоянных магнитов семейства NdFeB [4]. В случае, когда оба рассматриваемых явления — магнитная вязкость и магнитный гистерезис — обусловлены смещением доменных стенок (механизм "слабого" пиннинга), эта связь выражается простой линейной функцией  $\lg H_C = \lg H_f + \lg (25((31\gamma b^2/25k_BT) - 1))$  [4]. Здесь,  $\gamma$  — поверхностная плотность энергии доменных стенок, 4b — толщина доменной стенки,  $k_B$  — постоянная Больцмана, T — температура. Флуктуационное поле есть псевдомагнитное поле, введенное Вольфартом, для

обсуждения спонтанного перемагничивания, вызванного термическими флуктуациями. Физический смысл этой величины состоит в том, что  $H_f$  является мерой энергии термических флуктуаций, выраженной в единицах напряженности магнитного поля. В настоящей статье рассматриваются процессы перемагничивания посредством вращения вектора намагничености кластеров MnSb — наночастиц с одноосной магнитной анизотропией, внедренных в тонкие пленки GaMnSb. В условиях иного механизма перемагничивания в отсутствие доменных стенок взаимосвязь спонтанного и вынужденного перемагничивания в кластерах MnSb может оказаться иной,



**Рис. 1.** Полевые зависимости магнитной вязкости образца при температурах T = 8 K и 300 K. Вертикальными штриховыми линиями отмечены коэрцитивные силы при соответствующих температурах.

чем в постоянных магнитах NdFeB. Целями статьи являются: создание экспериментальных условий для поиска взаимосвязи термоактивационных и полевых процессов перемагничивания кластеров MnSb, внедренных в тонкие пленки GaMnSb, а также установление механизмов этой взаимосвязи.

## 2. Методика

Пленки GaMnSb толщиной ~ 90 nm были получены из системы GaSb—MnSb эвтектического состава, методом импульсного лазерного осаждения. В качестве подложек использовался монокристаллический  $Al_2O_3$ . Структура и состав тонких пленок контролировались сканирующим зондовым микроскопом и сканирующим электронным микроскопом. С помощью магнитно-силового микроскопа было установлено, что пленки содержат кластеры MnSb средним диаметром D = 55 nm [2]. Химический состав приповерхностных слоев пленок был определен методом энергодисперсионной спектроскопии. Подробно методика изготовления и аттестации образцов описана ранее [5].

С помощью СКВИД-магнитометра (MPMS 5XL Quantum Design) были выполнены измерения зависимостей магнитного момента образцов M от температуры T и напряженности магнитного поля H (в виде петель гистерезиса при различных температурах).

### 3. Результаты и обсуждение

3.1. Зависимость магнитной вязкости от напряженности магнитного поля. Магнитная вязкость тонких пленок GaMnSb, содержащих кластеры MnSb, подробно была исследована нами ранее в работах [1,2]. Здесь кратко приведены лишь те экспериментальные результаты, которые необходимы для обсуждения взаимосвязи спонтанного и вынужденного перемагничивания образцов. На рис. 1 представлены полевые зависимости магнитной вязкости S(H) образца при температурах T = 8 K и T = 300 K. Вертикальными лунктирными линиями отмечены коэрцитивные силы при соответствующих температурах (будут подробно обсуждаться ниже). На рис. 1 сплошными линиями показаны аппроксимации зависимостей S(H) функцией [2]

$$\frac{S}{M_S} = \frac{t}{25(1-h)^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln\frac{t}{(1-h)^2}}{\sigma}\right)^2\right), \quad (1)$$

где  $h = H/H_A$ ,  $t = T/T_B$  (здесь  $T_B$  — температура блокировки кластеров),  $M_S$  — намагниченность насыщения,  $\sigma$  — дисперсия магнитной анизотропии. Из аппроксимации зависимости S(H) при температуре T = 8 К были определены температура блокировки кластеров  $T_B = 390$  К, поле магнитной анизотропии  $H_A = 700$  Ое и ее дисперсия  $\sigma = 1.9$ .



Рис. 2. Петли магнитного гистерезиса образца при различных температурах.

3.2. Взаимосвязь спонтанного и вынужденного перемагничивания. Температурная зависимость коэрцитивной силы. Из рис. 1 следует, что максимум кривых S(H) совпадает с коэрцитивной силой  $H_C$  образца. Значение напряженности магнитного поля H, при котором функция (1) достигает максимума, как следует из рис. 1, есть коэрцитивная сила  $H_C$ . Таким образом, для установления связи коэрцитивной силы  $H_C$  с параметрами модели (1) необходимо найти экстремум функции (1)

$$\frac{\partial S}{\partial H} = \frac{\frac{t}{25\sigma}\sqrt{\frac{2}{\pi}}\exp\left(-\frac{\ln^2\left(\frac{t}{(1-h)^2}\right)}{2\ln^2 D}\right)}{H_A(1-h)^3} - \frac{\frac{t}{25\sigma}\sqrt{\frac{2}{\pi}}\ln\left(\frac{t}{(1-h)^2}\right)\exp\left(-\frac{\ln^2\left(\frac{t}{(1-h)^2}\right)}{2\ln^2 D}\right)}{H_A\ln^2 D(1-h)^3} = 0.$$
(2)

Решением уравнения (2) является выражение

$$H_C = H_A \left( 1 - \sqrt{\frac{T}{T_B \sigma^{\ln \sigma}}} \right). \tag{3}$$

Выражение (3) устанавливает связь коэрцитивной силы  $H_C$  с параметрами модели (1), которая в явном виде не содержит  $H_C$ . Другими словами, уравнение (3) и есть выражение искомой взаимосвязи полевых процессов вынужденного перемагничивания кластеров MnSb, внедренных в тонкие пленки GaMnSb, и термоактивационных процессов их спонтанного перемагничивания.

Для проверки справедливости формулы (3), описывающей температурную зависимость коэрцитивной силы  $H_C$ , были измерены петли магнитного гистерезиса при различных температурах (рис. 2). Полученные гистерезисные кривые типичны для ферромагнетиков:



**Рис. 3.** Температурная зависимость коэрцитивной силы образца. Сплошной линией показана аппроксимация.

наблюдается насыщение в магнитных полях ~ 500 Ое, форма петель близка к прямоугольной, коэрцитивная сила сильно зависит от температуры. Зависимость  $H_C(T)$  показана на рис. 3. С понижением температуры коэрцитивная сила увеличивается от 260 Ое при комнатной температуре до 600 Ое при температуре T = 2 К. Сплошной линией на рис. 3 показана аппроксимация зависимости  $H_C(T)$  выражением (3). На рис. З видно, что кривая, задаваемая формулой (3), достаточно близко воспроизводит экспериментальные точки. Из аппроксимации зависимости  $H_C(T)$  выражением (3) были определены температура блокировки кластеров  $T_B = 430 \pm 40$  K, поле магнитной анизотропии  $H_A = 630 \pm 70$  Oe и ее дисперсия  $\sigma = 1.5 \pm 0.4$ , которые оказались близки к соответствующим значениям, определенным из аппроксимации зависимостей S(H)выражением (1).

Следует отметить, что формула, определяющая зависимость  $H_C(T)$  для невзаимодействующих суперпарамагнитных наночастиц, подобная (3), впервые была получена в работе [6]. Она носит имя Кнеллера. Однако выражение (3), в отличие от формулы Кнеллера, учитывает распределение наночастиц по размерам. Ранее было установлено, что закон Кнеллера применим к самым различным наночастицам: Fe [7],  $Cu_x Co_{1-x}$  [8], ZnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [9], CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [10,11], NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [12], FeC [13], Mn<sub>0.5</sub>Zn<sub>0.5</sub>Gd<sub>0.02</sub>Fe<sub>1.98</sub>O<sub>4</sub> [14], Sr<sub>1/3</sub>Mn<sub>1/3</sub>Co<sub>1/3</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [15] и др. При этом в работах [9,12,14] были обнаружены расхождения между экспериментальными зависимостями  $H_C(T)$  и формулой Кнеллера, которые объясняются несколькими факторами: в первую очередь распределением наночастиц по размерам. Также диполь-дипольным взаимодействием между наночастицами, неупорядоченностью поверхностных спинов, которые влияют на поверхностную анизотропию и, следовательно, суммарную анизотропию наночастиц, разбросом осей легкого намагничивания и т.д. Как видно из рис. 3, формула (3), учитывая распределение кластеров по размерам, удовлетворительно воспроизводит экспериментальные точки. Более того, значения дисперсии  $\sigma$  и температуры блокировки  $T_B$  (соответствующей медиане функции распределения кластеров по размерам f(D)), определенные из аппроксимации зависимостей  $H_C(T)$  формулой (3), позволяют восстановить вид функции f(D).

3.3. Температурная зависимость магнитного момента. На рис. 4 приведена температурная зависимость магнитного момента образца M(T). При понижении температуры наблюдается рост величины *M*. В интервале температур  $T = 30 - 300 \, \text{K}$ кривая выпукла. При температуре  $T = 30 \, \text{K}$  происходит перегиб кривой, так что в интервале температур  $T = 2 - 30 \,\mathrm{K}$  кривая вогнута. Высокотемпературный участок кривой (при T > 30 K) описывался функцией  $M(T) = M(0)[1 - (T/T_C)^{\alpha}]$ , где M(0) — намагниченность при T = 0 K,  $T_C$  — температура Кюри. При  $\alpha = 3/2$  указанная зависимость называется законом Блоха ("законом 3/2"), которым хорошо описываются низкотемпературные ( $T < 0.5T_{C}$ ) фрагменты зависимостей M(T) массивных ферромагнитных образцов. Закон Блоха является следствием возбуждения длинноволновых спиновых волн — магнонов, число которых при низких температурах растет пропорционально  $T^{3/2}$ . Из аппроксимации высокотемпературной части зависимости M(T), показанной на рис. 4 сплошной линией, была определена температура Кюри  $T_C = 650 \pm 60$  K, которая оказалась близка к известному значению 590 К для соединения MnSb [16], и значение показателя степени  $\alpha = 2.4 \pm 0.2$ . Известно, что для наночастиц изза эффектов ограничения размера наблюдаются отклонения от "закона 3/2". Так, например, для наночастиц CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [11], NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [12], FeC [13], CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [17],  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> [18] имело место значение  $\alpha = 2$ . Ограничение размера наночастиц приводит к тому,



**Рис. 4.** Температурная зависимость магнитного момента образца. Сплошной линией показана аппроксимация.

что магноны с длиной волны, превосходящей размеры наночастицы, не могут возбуждаться, что формирует энергетическую щель в дискретном спектре спиновых волн [14,19,20]. Другая причина заключается в обрыве обменных связей у поверхностных атомов, что приводит к фрустрированным магнитным состояниям и спиновому беспорядку.

Ранее перегиб на зависимостях M(T), аналогичный тому, который наблюдается при T = 30 К в наших экспериментах, наблюдался на температурных зависимостях магнитного момента наночастиц Sr<sub>1/3</sub>Mn<sub>1/3</sub>Co<sub>1/3</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [15], CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [21], CuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> и MnFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [22]. Эту особенность, как правило, относят к неупорядоченным поверхностным спинам. Их вклад в температурную зависимость суммарного магнитного момента описывался феноменологическим выражением  $A \exp(-T/T_f)$ , где A — доля приповерхностных атомов,  $T_f$  — температура замерзания термически индуцированных флуктуаций поверхностных спинов [22]. Из аппроксимации низкотемпературной части зависимости M(T), показанной на рис. 4 сплошной линией, была определена температура замерзания  $T_f = 8 \,\mathrm{K}$ . Соответствующая энергия  $k_{\rm B}T_f \sim 1\cdot 10^{-15}\,{
m erg}$  оказалась близка к значению обменного интеграла 7 · 10<sup>-15</sup> erg в тонких пленках MnSb [23].

#### 4. Выводы

Измерены зависимости магнитного момента тонких пленок GaMnSb, содержащих кластеры MnSb, от температуры и напряженности магнитного поля (в виде петель гистерезиса при различной температуре). Температурная зависимость коэрцитивной силы  $H_C(T)$ кластеров MnSb описывается модифицированным законом Кнеллера, учитывающим распределение кластеров по размерам f(D). Анализ экспериментальной кривой  $H_C(T)$  позволил определить температуру блокировки кластеров  $T_B = 430$  K, поле магнитной анизотропии  $H_A = 630$  Oe и дисперсию функции  $f(D)\sigma = 1.5$ .

Температурная зависимость магнитного момента M(T) образцов описывается модифицированным законом Блоха. Отклонение от "закона 3/2" обусловлено ограничением размера кластеров MnSb, которое приводит к подавлению возбуждения магнонов с длиной волны, превосходящей размеры кластеров. При температуре T = 30 К на зависимости M(T) обнаружен перегиб, обусловленный вкладом в суммарный магнитный момент неупорядоченных поверхностных спинов. Этот вклад становится заметным при температурах, сопоставимых с температурой замерзания  $T_f = 8$  К термически индуцированных флуктуаций поверхностных спинов.

А.И. Дмитриев признателен за предоставленные образцы Р.Б. Моргунову — учителю, многолетней работой с которым обусловлен интерес к теме, обсуждаемой в статье, и А.Д. Таланцеву за помощь в исследованиях на СКВИД-магнитометре.

#### Список литературы

- [1] А.И. Дмитриев, А.А. Филатов. ФТТ 58, 1935 (2016).
- [2] A.I. Dmitriev, A.D. Talantsev, O.V. Koplak, R.B. Morgunov. J. Appl. Phys. **119**, 073905 (2016).
- [3] В.В. Рыльков, Б.А. Аронзон, Ю.А. Данилов, Ю.Н. Дроздов, В.П. Лесников, К.И. Маслаков, В.В. Подольский. ЖЭТФ 127, 838 (2005).
- [4] J. Liu, S. Pan, H. Luo, D. Hou, X. Nie. J. Phys. D 24, 384 (1991).
- [5] 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).
- [6] E.F. Kneller, F.E. Luborsky. J. Appl. Phys. 34, 656 (1963).
- [7] A.K. Giri. J. Appl. Phys. 81, 1348 (1997).
- [8] W.C. Nunes, W.S.D. Folly, J.P. Sinnecker, M.A. Novak. Phys. Rev. B 70, 014419 (2004).
- [9] E.C. Mendonca, C.B.R. Jesus, W.S.D. Folly, C.T. Meneses, J.G.S. Duque, A.A. Coelho. J. Appl. Phys. 111, 053917 (2012).
- [10] M.H. Carvalho, R.J.S. Lima, C.T. Meneses, W.S.D. Folly, V.H.V. Sarmento, A.A. Coelho, J.G.S. Duque. J. Appl. Phys. 119, 093909 (2016).
- [11] K. Maaz, M. Usman, S. Karim, A. Mumtaz, S.K. Hasanain, M.F. Bertino. J. Appl. Phys. **105**, 113917 (2009).
- [12] K. Maaz, A. Mumtaz, S.K. Hasanain, M.F. Bertino. J. Magn. Magn. Mater. **322**, 2199 (2010).
- [13] S. Linderoth, L. Balcells, A. Labarta, J. Tejada, P.V. Hendriksen, S.A. Sethi. J. Magn. Magn. Mater. 124, 269 (1993).
- [14] I.M. Obaidat, B. Issa, B.A. Albiss, Y. Haik. IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng. 92, 012012 (2015).
- [15] N.S.E. Osman, T. Moyo. J. Supercond. Nov. Magn. 29, 361 (2016).
- [16] R. Coehoorn, C. Haas, R.A. Groot. Phys. Rev. B 31, 1980 (1985).
- [17] C.R. Alves, R. Aquino, M.H. Sousa, H.R. Rechenbrg, G.F. Goya, F.A. Tourinho, J. Depeyrot. J. Met. Nanocryst. Mater. 20–21, 694 (2004).
- [18] D. Ortega, E. Vélez-Fort, D.A. García, R. García, R. Litrán, C. Barrera-Solano, M. Ramírez-del-Solar, M. Domínguez. Phil. Trans. R. Soc. A 368, 4407 (2010).
- [19] P.V. Hendriksen, S. Linderoth, P.A. Lindgard, J. Magn. Magn. Mater. 104–107, 1577 (1992).
- [20] P.V. Hendriksen, S. Linderoth, P.A. Lindgard. Phys. Rev. B 48, 7259 (1993).
- [21] C.R. Alves, R. Aquino, J. Depeyrot, T.A. Cotta, M.H. Sousa, F.A. Tourinho, H.R. Rechenberg, G.F. Goya. J. Appl. Phys. 99, 08M905 (2006).
- [22] R. Aquino, J. Depeyrot, M.H Sousa, F.A. Tourinho, E. Dubois, R. Perzynski. Phys. Rev. B 72, 18443 (2005).
- [23] M. Hashimoto. J. Phys. Soc. Jpn. 22, 869 (1967).