

## 05 Влияние дисперсии магнитной анизотропии кластеров $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$ на температурные зависимости намагниченности тонких пленок $\text{Ge} : \text{Mn}$

© А.И. Дмитриев<sup>1,2</sup>, М.С. Дмитриева<sup>1,2</sup>, Г.Г. Зиборов<sup>3</sup>

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

<sup>2</sup> Российский университет транспорта, Москва, Россия

<sup>3</sup> Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

E-mail: aid@icp.ac.ru

Поступило в Редакцию 12 октября 2018 г.

Для ионно-имплантированных тонких пленок  $\text{Ge} : \text{Mn}$  (4 at.% Mn), содержащих кластеры  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$ , получены температурные зависимости намагниченности  $M(T)$ , измеренные после охлаждения пленок в нулевом магнитном поле (ZFC) и в магнитном поле 10 kOe (FC). Установлено, что вид ZFC–FC-кривых  $M(T)$  определяется логнормальным распределением энергии магнитной анизотропии кластеров, задаваемым их распределением по размеру. Анализ ZFC–FC-кривых позволил оценить температуру блокировки и дисперсию магнитной анизотропии кластеров, а также константу магнитной анизотропии.

DOI: 10.21883/PJTF.2019.02.47221.17559

Разбавленные магнитные полупроводники — эффективная среда для создания спиновой поляризации носителей заряда. Однако величина косвенного обмена, поддерживающего спин-поляризованное состояние, настолько мала, что соответствующие температуры Кюри значительно ниже комнатной (обычно ниже 110 K). Причина заключается в плохой растворимости примеси переходных металлов в полупроводниковой матрице и как следствие в образовании различных кластеров вторичной фазы [1–4]. Присутствие этих включений, зачастую ферромагнитных при комнатной температуре, обычно считалось вредным, так как их образование приводило к обеднению подсистемы диспергированных ионов переходных металлов и вследствие этого к понижению температуры магнитного упорядочения в ней. Однако недавно появились свидетельства в пользу того, что ферромагнитные кластеры могут формировать необычные свойства разбавленных магнитных полупроводников, требуемые спинтроникой. В качестве примера можно привести пленки  $\text{GaAs} : \text{Mn}$  с кластерами  $\text{MnAs}$ , в которых наблюдались магнитный круговой дихроизм и фарадеевское вращение [1,2], положительное магнетосопротивление [3], генерация спинового тока за счет спонтанного перемагничивания кластеров  $\text{MnAs}$  [4] и т.д.

В настоящей работе исследованы тонкие пленки  $\text{Ge} : \text{Mn}$  (4 at.% Mn), содержащие кластеры  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$ , полученные методом ионной имплантации. Ранее эти образцы привлекли внимание благодаря микроволновому магнетосопротивлению при комнатных температурах [5]. Интерес к ним обусловлен также экзотическим ферромагнитным упорядочением в подсистеме диспергированных ионов марганца, происходящим по перколяционному сценарию при низких температурах (< 13 K). К настоящему моменту пленки  $\text{Ge} : \text{Mn}$  хорошо исследованы.

В [6,7] обсуждались фундаментальные закономерности возбуждения и распространения спиновых волн и спин-волновой резонанс, в [8] изучены механизмы переноса носителей заряда. В настоящей работе измерены температурные зависимости магнитного момента пленок  $\text{Ge} : \text{Mn}$ , охлажденных в нулевом магнитном поле и в магнитном поле  $H = 10 \text{ kOe}$ . Целью работы является установление влияния распределения кластеров  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$  по размеру на температурные зависимости намагниченности пленок  $\text{Ge} : \text{Mn}$ .

Образцы  $\text{Ge} : \text{Mn}$  (4 at.% Mn) толщиной 120 nm были изготовлены методом ионной имплантации ионов марганца в пластины монокристаллического германия (рис. 1, а). Подробно методика изготовления образцов тонких пленок описана в работе [9]. Структура пленок была исследована ранее методами просвечивающей электронной микроскопии, рентгеновской дифракции, рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии [9]. Было установлено, что пленки  $\text{Ge} : \text{Mn}$  содержат кластеры  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$  со средним диаметром 9 nm (рис. 1, б), а также изолированные ионы  $\text{Mn}^{2+}$  в узлах кристаллической решетки германия. Измерения магнитного момента пленок проводились с помощью СКВИД-магнитометра MPMS 5XL (Quantum Design) при температурах  $T = 2–350 \text{ K}$  в постоянном магнитном поле  $H = 100 \text{ Oe}$ .

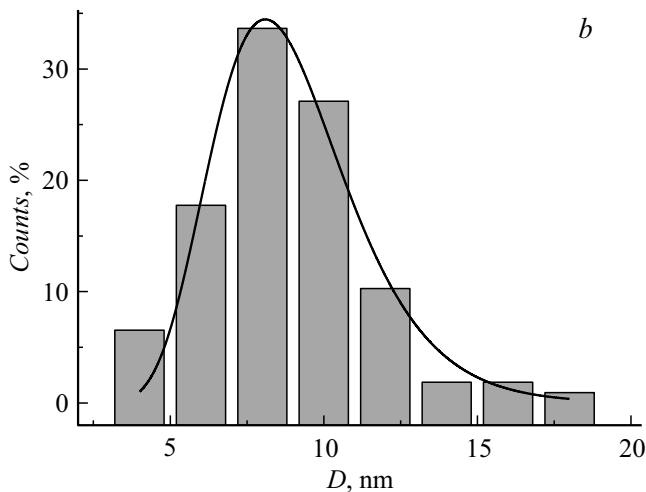
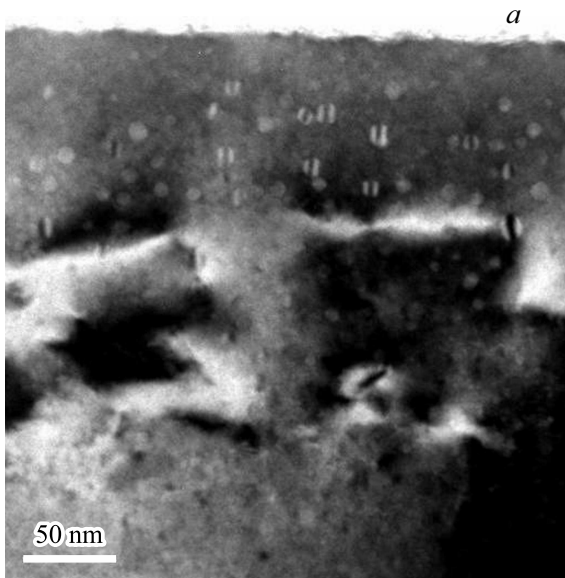
На рис. 2 представлены температурные зависимости магнитного момента пленки  $\text{Ge} : \text{Mn}$ , охлажденной в нулевом магнитном поле (ZFC) и в магнитном поле  $H = 10 \text{ kOe}$  (FC). На рис. 2 видны две критические температуры. Одна из них — температура Кюри кластеров  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$  ( $T_C = 281 \text{ K}$ ), вторая — температура блокировки ( $T_B = 214 \text{ K}$ ). Вид зависимостей  $M_{\text{ZFC}}$  и  $M_{\text{FC}}$  определяется распределением кластеров  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$  по

размеру (по энергии магнитной анизотропии) [10]:

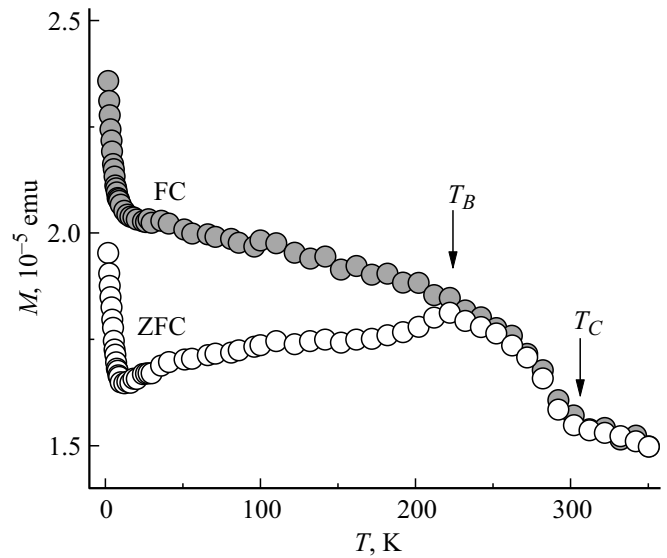
$$M_{\text{ZFC}} = \frac{HM_S^2}{3k_B T} \int_0^{V_{\text{lim}}} V^2 \rho(V) dV + \frac{HM_S^2}{3K} \int_{V_{\text{lim}}}^{\infty} V \rho(V) dV, \quad (1)$$

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

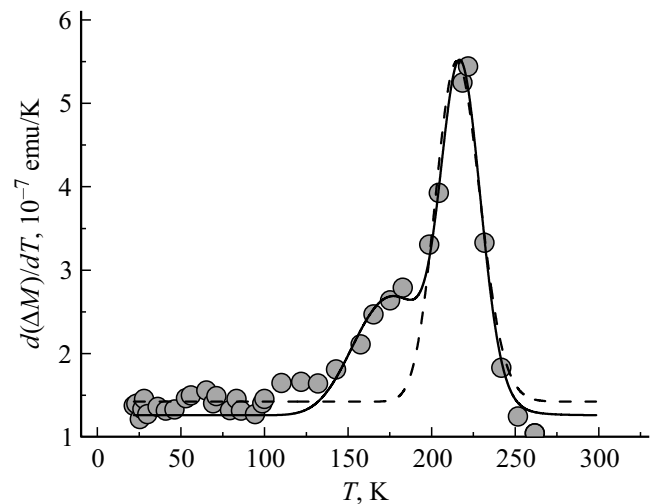
где  $H$  — напряженность магнитного поля,  $M_S$  — намагниченность насыщения,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура,  $V$  — объем кластеров,  $K$  — константа магнитной анизотропии,  $V_{\text{lim}} = \gamma k_B T / K$  — значение объема, выше которого кластеры находятся в заблокированном состоянии; коэффициент  $\alpha$  определяется выражением  $\alpha = 0.9283 \ln(\nu_0 K \langle V \rangle / k_B \nu_T) - 3.96$ , коэффициент  $\gamma$



**Рис. 1.** *a* — изображение поперечного сечения ионно-имплантированной пленки  $\text{Ge}:\text{Mn}$  (4 at.% Mn), полученное с помощью просвечивающего электронного микроскопа; *b* — гистограмма распределения кластеров  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$  по диаметру.



**Рис. 2.** Температурные зависимости магнитного момента пленки, охлажденной в нулевом магнитном поле (ZFC) и в магнитном поле  $H = 10 \text{ kOe}$  (FC).



**Рис. 3.** Температурная зависимость производной  $d(\Delta M)/dT$ . Линиями показаны аппроксимации (пояснение в тексте).

определяется выражением  $\gamma = 0.9609 \ln(\nu_0 T_{\text{max}} / \nu_T) - 1.629$  (здесь  $\nu_0$  — характерная частота термических флуктуаций,  $\nu_T$  — скорость изменения температуры,  $\langle V \rangle$  — средний объем,  $T_{\text{max}}$  — 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 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. 3 представлена температурная зависимость производной  $d(\Delta M)/dT$  и ее аппроксимация выражением (4) с функцией распределения, задаваемой формулой (3) (штриховая линия). Коэффициент детерминации  $R^2 = 0.79$ . Из аппроксимации были найдены температура блокировки  $T_B = 214$  К и дисперсия магнитной анизотропии  $\sigma_E = 1.1$ , значение которой оказалось близко к дисперсии распределения кластеров по диаметру  $\sigma_D = 1.2$ . Немонотонная зависимость  $d(\Delta M)/dT$  отражает распределение кластеров  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$  по размеру (рис. 1, *b*) или, что то же самое, по энергии магнитной анизотропии. Приведенная на рис. 3 кривая воспроизводит вид зависимости  $\rho(E_a)$  (здесь  $E_a = KV$  — энергия магнитной анизотропии), т.е. воспроизводит энергетический профиль магнитной анизотропии. Из рис. 1, *b* видно, что распределение кластеров  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$  по диаметру является логнормальным с правосторонней асимметрией (правый „хвост“ значительно длиннее левого). Однако распределение  $\rho(E_a)$ , как видно из рис. 3, имеет левостороннюю асимметрию (левый „хвост“ значительно длиннее правого), что, вообще говоря, не характерно для логнормальной функции. Скорее всего, в образцах присутствует еще один вид нановключений, которые не видны в электронном микроскопе. Поэтому наблюдаемая зависимость  $\rho(E_a)$  может быть порождена двумя или более „наложенными“ распределениями, т.е. распределение  $\rho$  мультимодально. Сплошной линией на рис. 3 показана аппроксимация зависимости производной  $d(\Delta M)/dT$  выражением (4) с двумя функциями распределения, задаваемыми формулой (3). Это эквивалентно предположению, что выборка происходит из двух разных „популяций“ нановключений, так как наличие двух мод в одной популяции — маловероятное явление, которое не подтверждается данными электронной микроскопии. Коэффициент детерминации  $R^2 = 0.91$  заметно выше, чем в случае унимодального распределения. С помощью аппроксимации были определены значения температуры блокировки  $T_B = 217$  К для кластеров  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$  и 173 К для второй „популяции“ нановключений, значения  $\sigma_E = 1.05$  для обеих „популяций“ близки. Второй вид нановключений может представлять собой области  $\text{Ge}_m\text{Mn}_n$ , имеющие более высокую локальную концентрацию Mn по сравнению со средней концентрацией в объеме. Химическое фазовое разделение сплава на обогащенные и обедненные Mn области наблюдалось ранее в наноструктурах Ge : Mn [11]. Зная температуру блокировки  $T_B = 217$  К и средний диаметр 9 nm кластеров  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$ , можно оценить константу магнитной анизотропии  $K$  по формуле  $T_B = KV/25k_B$ . Значение константы магнитной анизотропии  $K = 2 \cdot 10^6$  erg/cm<sup>3</sup>

оказалось близко к соответствующему значению, полученному ранее в работе [12].

Таким образом, установлено, что вид температурных зависимостей намагниченности тонких пленок Ge : Mn (4 at.% Mn) с кластерами  $\text{Ge}_3\text{Mn}_5$ , измеренных после охлаждения пленок в нулевом магнитном поле и в магнитном поле 10 kOe, определяется логнормальным распределением кластеров по энергии магнитной анизотропии.

Авторы признательны О.Л. Казаковой за образцы и данные просвечивающей электронной микроскопии.

Работа выполнена по теме государственного задания 0089-2019-0011.

## Список литературы

- [1] Akinaga H., Miyanishi S., Tanaka K., Van Roy W., Onodera K. // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 76. N 1. P. 97–99.
- [2] Shimizu H., Tanaka M. // J. Appl. Phys. 2001. V. 89. N 11. P. 7281–7283.
- [3] Yuldashev Sh.U., Shon Y., Kwon Y.H., Fu D.J., Kim D.Y., Kim H.J., Kang T.W., Fan X. // J. Appl. Phys. 2001. V. 90. N 6. P. 3004–3006.
- [4] Hai P.N., Ohya S., Tanaka M., Barnes S.E., Maekawa S. // Nature. 2009. V. 458. N 7237. P. 489–492.
- [5] Дмитриев А.И., Моргунов Р.Б., Казакова О.Л. // ФТП. 2010. Т. 44. В. 3. С. 320–325.
- [6] Дмитриев А.И., Моргунов Р.Б., Казакова О.Л., Танимото Й. // ЖЭТФ. 2009. Т. 135. В. 6. С. 1134–1141.
- [7] Дмитриев А.И., Дмитриева М.С., Зиборов Г.Г. // ФТТ. 2018. Т. 60. В. 5. С. 919–922.
- [8] Дмитриев А.И., Буравов Л.И. // ФТТ. 2017. Т. 59. В. 3. С. 523–527.
- [9] Ottaviano L., Passacantando M., Verna A., Gunnella R., Principi E., Di Cicco A., Impellizzeri G., Priolo F. // J. Appl. Phys. 2006. V. 100. N 6. P. 063528.
- [10] Tournus F., Tamion A. // J. Magn. Magn. Mater. 2011. V. 323. N 9. P. 1118–1127.
- [11] Li A.P., Zeng C., van Benthem K., Chisholm M.F., Shen J., Nageswara Rao S.V.S., Dixit S.K., Feldman L.C., Petukhov A.G., Foygel M., Weitering H.H. // Phys. Rev. B. 2007. V. 75. N 20. P. 201201.
- [12] Jain A., Jamet M., Barski A., Devillers T., Yu I.-S., Porret C., Bayle-Guillemaud P., Favre-Nicolin V., Gambarelli S., Maurel V., Desfonds G., Jacquot J.F., Tardif S. // J. Appl. Phys. 2011. V. 109. N 1. P. 013911.