

# Низкотемпературная магнитная вязкость в тонких пленках GaMnSb, содержащих кластеры MnSb

А.И. Дмитриев

Институт проблем химической физики РАН, Черноголовка, Россия  
E-mail: aid@icp.ac.ru

С.А. Костюченко

МГУ им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

Статья поступила в редакцию 8 апреля 2016 г., опубликована онлайн 25 июля 2016 г.

Измерены временные зависимости магнитного момента  $m(t)$  тонких пленок GaMnSb, содержащих кластеры MnSb. Обнаружено, что кривые  $m(t)$  спрямляются в полулогарифмических координатах  $m(\ln t)$ . Угловой коэффициент прямых  $m(\ln t)$  соответствует магнитной вязкости  $S$ . Установлено, что полевые зависимости магнитной вязкости  $S(H)$  и магнитного момента  $m(H)$  при низких температурах определяются логнормальным распределением энергии магнитной анизотропии кластеров MnSb.

Виміряно часові залежності магнітного моменту  $m(t)$  тонких плівок GaMnSb, що містять кластери MnSb. Виявлено, що криві  $m(t)$  спрямляються в напівлогарифмічних координатах  $m(\ln t)$ . Кутівий коефіцієнт прямих  $m(\ln t)$  відповідає магнітній в'язкості  $S$ . Встановлено, що польові залежності магнітної в'язкості  $S(H)$  і магнітного моменту  $m(H)$  при низьких температурах визначаються логнормальним розподілом енергії магнітної анізотропії кластерів MnSb.

PACS: 75.50.Pp Магнитные полупроводники;  
75.70.Ak Магнитные свойства монослоев и тонких пленок;  
**75.75.-c** Магнитные свойства наноструктур;  
75.60.Jk Механизмы перемангничивания.

Ключевые слова: тонкие пленки, разбавленные магнитные полупроводники, кластеры.

## 1. Введение

Известные трудности в изготовлении разбавленных магнитных полупроводников и интерпретации их магнитных свойств обусловлены плохой растворимостью примеси переходных металлов в полупроводниковой матрице и, как следствие, образованием кластеров вторичной фазы [1–4]. В качестве примеров можно привести гетероструктуры GaMnAs с кластерами MnAs [1,2], тонкие пленки GeMn с кластерами Mn<sub>5</sub>Ge<sub>3</sub> [3,4] и др.

Перемангничивание тонких пленок, содержащих кластеры, обусловлено термоактивированными «перескоками» через потенциальный барьер  $E_a$  (рис. 1). Это явление называется магнитной релаксацией, характерное время  $\tau$  которой определяется законом Аррениуса:

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E_a}{k_B T}\right), \quad (1)$$

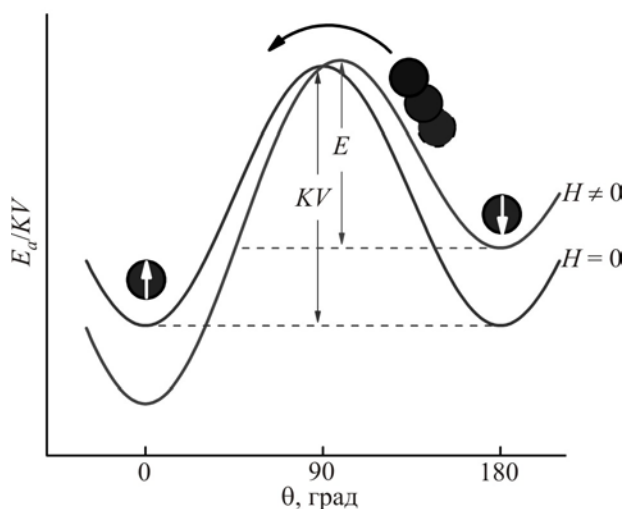


Рис. 1. Схема энергетического барьера  $E_a$ , преодолеваемого кластерами при перемангничивании, в нулевом магнитном поле и магнитном поле, отличном от нуля.

где  $E_a = KV$  — энергия магнитной анизотропии (здесь  $K$  — константа магнитной анизотропии,  $V$  — объем кластера),  $\tau_0$  — предэкспоненциальный фактор, имеющий смысл времени ожидания «перескока»,  $T$  — температура,  $k_B$  — постоянная Больцмана. Выражение (1) справедливо в самом простейшем случае, когда релаксационный процесс характеризуется единственным значением времени  $\tau$  (в отсутствие распределения кластеров по размерам). Соответствующая временная зависимость магнитного момента  $m(t)$  описывается экспоненциальной функцией [5]:

$$m(t) = m_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right), \quad (2)$$

где  $m_0$  — начальное значение магнитного момента.

В более сложном случае, когда флуктуации характеризуются распределением времен релаксации  $f(\tau)$  (распределением кластеров по размерам  $f(V)$ ), выражение (1) следует привести к виду [6]:

$$\tau = \tau_0 \int f(V) \exp\left(\frac{KV}{k_B T}\right) dV. \quad (3)$$

В этом случае временная зависимость магнитного момента  $m(t)$  находится интегрированием выражения (2) с плотностью распределения  $f(V)$  [5]:

$$m(t) = m_0 \int f(V) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dV. \quad (4)$$

В случае широкого распределения времен релаксации  $\tau_1 < \tau < \tau_2$  из выражения (4) следует, что приращение магнитного момента  $\Delta m(t) = m_0 - m(t)$  примет вид [6]:

$$\frac{\Delta m}{m_s} \sim S \ln t, \quad (5)$$

где  $m_s$  — магнитный момент насыщения,  $S$  — магнитная вязкость.

Таким образом, логарифмическая кинетика спонтанного перемангничивания тонких пленок, содержащих кластеры, определяется суперпозицией релаксационных процессов с широким распределением времен релаксации. В настоящей работе при низких температурах измерены временные зависимости магнитного момента  $m(t)$  тонких пленок GaMnSb, содержащих кластеры MnSb, а также исследованы полевые зависимости магнитной вязкости  $S(H)$  и магнитного момента  $m(H)$ . Цель работы — поиск влияния распределения кластеров MnSb по размерам на магнитную вязкость в тонких пленках GaMnSb.

## 2. Методика

Пленки GaMnSb толщиной 90 нм и площадью  $\sim 1 \text{ см}^2$  были получены из системы GaSb–MnSb эвтектического состава методом импульсного лазерного

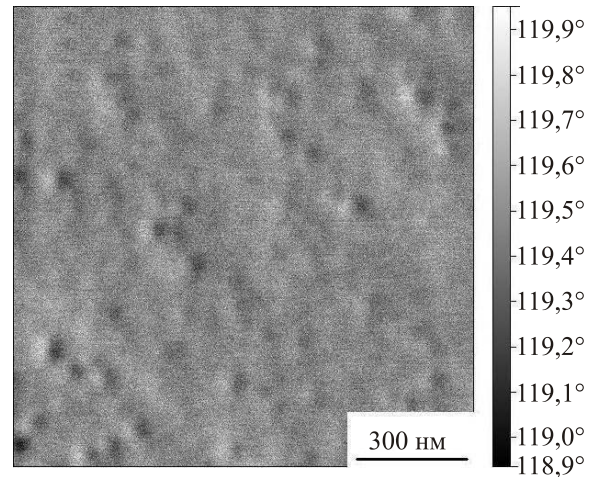


Рис. 2. Изображение поверхности тонкой пленки GaMnSb, полученное с помощью магнитно-силового микроскопа.

осаждения в условиях высокого вакуума при температуре 100 °С. В качестве подложек использовался монокристаллический  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . После напыления образец был подвергнут отжигу при температуре 350 °С в течение 30 мин. 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, представленное на рис. 2, показывает, что пленки имеют магнитные нановключения, т.е. являются гранулированными. Подробно методика изготовления и аттестации образца описана ранее [7,8].

С помощью СКВИД магнитометра (MPMS 5XL Quantum Design) были выполнены стандартные измерения полевой зависимости магнитного момента образца  $m(H)$  при температуре  $T = 8 \text{ К}$ . С помощью СКВИД магнитометра также были получены временные зависимости магнитного момента  $m(t)$  в интервале магнитных полей  $H = 100\text{--}1000 \text{ Э}$  при температуре  $T = 8 \text{ К}$ .

## 3. Результаты и обсуждение

### 3.1. Зависимость магнитного момента от напряженности магнитного поля

На рис. 3(а) представлена зависимость магнитного момента  $m(H)$  тонкой пленки GaMnSb от напряженности магнитного поля при  $T = 8 \text{ К}$ . Магнитный момент насыщения достигает значения  $m_s = 3,25 \text{ }\mu_B$ , близкого к соответствующему значению  $3,57 \text{ }\mu_B$  для стехиометрического сплава MnSb [9].

Вид зависимости  $m(H)$  определяется распределением кластеров MnSb по размерам (по энергиям магнитной анизотропии) [10]:

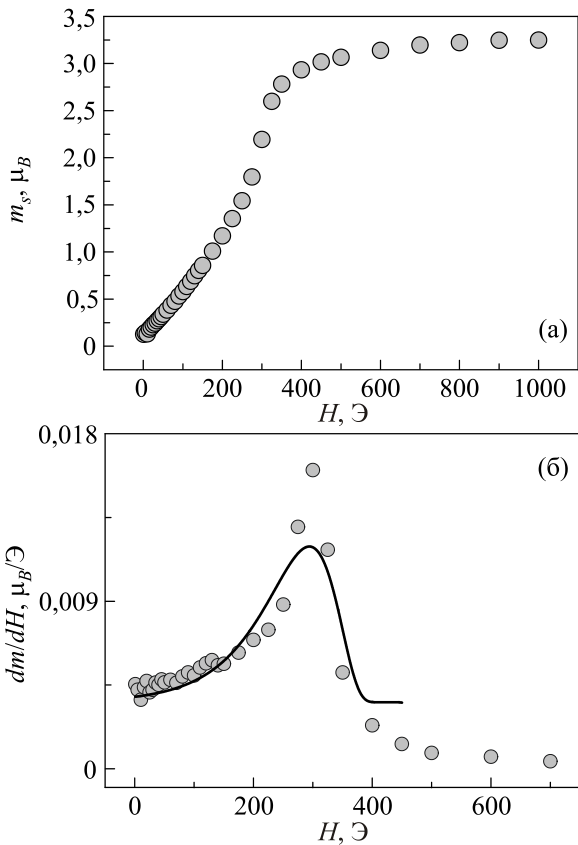


Рис. 3. (а) Зависимость магнитного момента образца от напряженности магнитного поля при температуре  $T = 8$  К. (б) Полевая зависимость производной  $dm/dH$ . Сплошной линией показана аппроксимация.

$$m = \frac{M_s}{2} \int_{V_{\text{lim}}}^{\infty} \frac{1-x^3}{1+x^3} V f(V) dV, \quad (6)$$

где

$$x = \frac{1 + 2\left(\frac{H}{H_a}\right)^2 - \sqrt{12\left(\frac{H}{H_a}\right)^2 - 3}}{2\left(1 - \left(\frac{H}{H_a}\right)^2\right)}.$$

Здесь  $H$  — напряженность магнитного поля,  $M_s$  — намагниченность насыщения,  $H_a$  — поле магнитной анизотропии,  $V_{\text{lim}} = 25k_B T / (1 - (H/H_a))^2$  — значение объема, выше которого кластеры находятся в заблокированном состоянии. Распределение кластеров по объему задается логнормальной функцией:

$$f(V) = \frac{1}{V\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2} \left[\frac{\ln \frac{V}{V_m}}{\sigma}\right]^2\right), \quad (7)$$

где  $\sigma$  — дисперсия,  $V_m$  — медианный объем.

Для удобства анализа экспериментальных данных найдем производную  $dm/dH$  от выражения (6), предварительно сделав в интеграле замену переменных  $V = 25k_B T / (1 - (H/H_a))^2$ :

$$\frac{dm}{dH} = \frac{4f\left(\frac{25k_B T}{K\left(1 - \frac{H}{H_a}\right)^2}\right) (25k_B T)^2}{M_s H_a^3 \left(1 - \frac{H}{H_a}\right)^5} \frac{1-x^3}{1+x^3}. \quad (8)$$

На рис. 3(б) представлена температурная зависимость производной  $dm/dH$  и ее аппроксимация выражением (8). Немонотонная зависимость  $dm/dH$  обусловлена логнормальным распределением кластеров MnSb по размерам. Из аппроксимации удалось восстановить вид зависимости  $\rho(E_a)$ , которая ниже будет сопоставлена с распределением кластеров по размерам (диаметрам  $D$ ), полученным из данных магнитно-силовой микроскопии.

### 3.2. Временные зависимости магнитного момента. Зависимость магнитной вязкости от напряженности магнитного поля

На рис. 4(а) представлена схема переключения внешнего магнитного поля в экспериментах по измерению зависимостей  $m(t)$ . Вначале образец намагничивался в магнитном поле  $H = 2$  кЭ (превышающем поле насыщения). Время  $t_1$  экспозиции образца в магнитном поле составляло 300 с. После выдержки образца в маг-

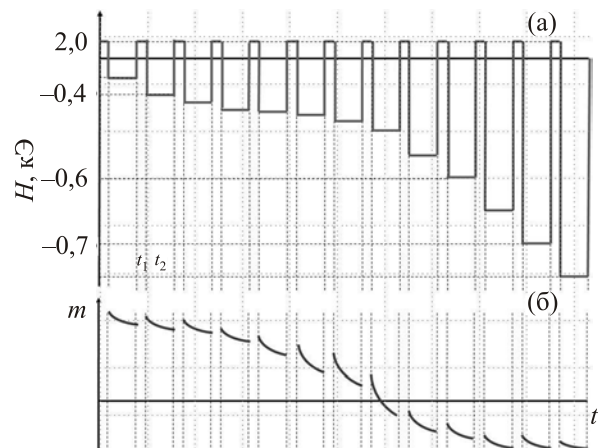


Рис. 4. (а) Схема переключения внешнего магнитного поля в экспериментах по измерению временных зависимостей магнитного момента. (б) Схематическое изображение изменения магнитного момента тонких пленок. Отмечены промежутки времен:  $t_1 = 300$  с — длительность экспозиции образцов в магнитном поле  $H = 2$  кЭ (превышающем поле насыщения  $H_s$ ),  $t_2 = 2400$  с — длительность измерения временных зависимостей магнитного момента образцов.

нитном поле  $H = 2$  кЭ в течение  $t_1 = 300$  с включалось поле, направленное против вектора магнитного момента образца. Время развертки поля составляло около 90 с. После установки отрицательного магнитного поля происходила запись временной зависимости магнитного момента. Длительность  $t_2$  измерения зависимостей  $m(t)$  составляла 2400 с. Было выполнено около десяти циклов перемагничивания в различных магнитных полях напряженностью  $H = 100\text{--}1000$  Э при температуре 8 К. На рис. 4(б) показано схематическое изображение изменения магнитного момента образца.

На рис. 5 показаны временные зависимости изменения магнитного момента  $\Delta m(t)$ , выраженного в единицах намагниченности насыщения  $m_s$ , в магнитном поле различной напряженности, направленном против вектора магнитного момента образца. На рис. 5 видно, что зависимости  $\Delta m(t)$  спрямляются в полулогарифмических координатах. Сплошными линиями показаны аппроксимации выражением (5). Тангенс угла наклона зависимости  $\Delta m(\ln t)$  соответствует магнитной вязкости  $S = dm/d(\ln t)$ .

На рис. 5 видно, что угол наклона прямых  $\Delta m(\ln t)$ , а значит, магнитная вязкость, является немонотонной функцией напряженности магнитного поля. На рис. 6 показана зависимость  $S(H)$  при  $T = 8$  К. Зависимость  $S(H)$  имеет максимум вблизи напряженности магнитного поля 600 Э, которая близка к коэрцитивной силе  $H_c$  образца при этой же температуре.

Вид полевой зависимости  $S$  зависит от распределения кластеров по размерам и определяется выражением [11,12]:

$$\frac{S}{m_s} = \frac{T}{25T_b} f(V_c)V_c, \quad (9)$$

где  $T_b$  — температура блокировки кластеров, соответствующая медиане распределения кластеров по разме-

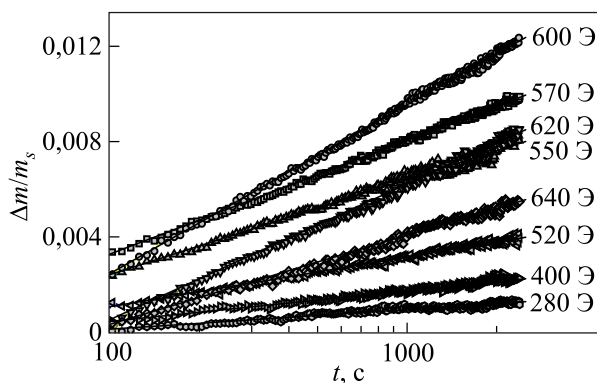


Рис. 5. Временные зависимости изменения магнитного момента  $\Delta m(t)$ , выраженного в единицах магнитного момента насыщения  $m_s$ , в магнитном поле различной напряженности, направленном против вектора магнитного момента образца, при температуре  $T = 8$  К в полулогарифмических координатах. Сплошными линиями показаны аппроксимации.

рам,  $V_c = 25k_B T/K$  — критический объем,  $f(V_c)$  — функция распределения кластеров по  $V_c$ . В заданном магнитном поле 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. В случае логнормального распределения  $f(V_c)$  выражение для магнитной вязкости должно иметь вид:

$$\frac{S}{M_s} = \frac{T}{25T_b} \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln \frac{T}{T_b}}{\sigma}\right)^2\right), \quad (10)$$

где  $\sigma$  — среднеквадратическое отклонение. На рис. 6 сплошной линией показана аппроксимация зависимости  $S(H)$  функцией (11), полученной из выражения (10), в котором было учтено, что энергетический барьер, разделяющий два направления намагниченности, а значит, температура блокировки  $T_b$  и критический объем  $V_c$ , зависят от соотношения приложенного магнитного поля  $H$  и поля анизотропии  $H_a$  (рис. 1):

$$\frac{S}{m_s} = \frac{T}{25T_b \left(1 - \frac{H}{H_a}\right)^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln \frac{T}{T_b \left(1 - \frac{H}{H_a}\right)^2}}{\sigma}\right)^2\right). \quad (11)$$

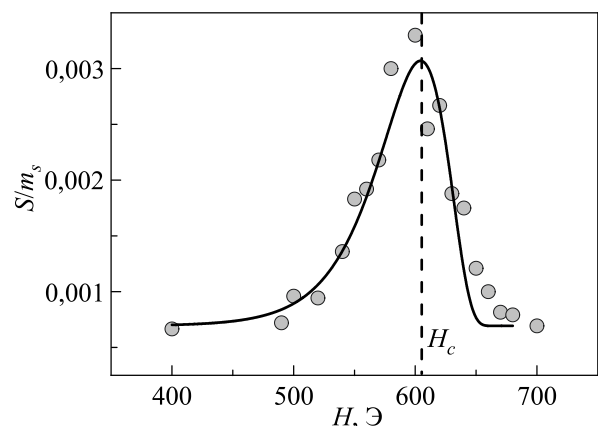


Рис. 6. Зависимость магнитной вязкости  $S$ , выраженной в единицах магнитного момента насыщения  $m_s$ , от напряженности магнитного поля при  $T = 8$  К. Сплошной линией показана аппроксимация.

Из аппроксимации зависимостей  $S(H)$  при температуре  $T = 8$  К была определена температура блокировки  $T_b = 390$  К кластеров, а также поле магнитной анизотропии  $H_a = 700$  Э при  $T = 8$  К. Таким образом, из рис. 6 следует, что полевая зависимость магнитной вязкости определяется логнормальным распределением энергии магнитной анизотропии  $f(E_a)$  кластеров MnSb.

Зная поле магнитной анизотропии и намагниченность насыщения, определенной из зависимостей магнитного момента от напряженности магнитного поля (рис. 3(а)), можно оценить константу магнитной анизотропии согласно формуле  $H_a = 2K/M_s$ . При температуре 8 К константа магнитной анизотропии  $K = 7,2 \cdot 10^4$  эрг/см<sup>3</sup>. Определенное здесь значение  $K$  при  $T = 8$  К близко к значению  $K = 14 \cdot 10^4$  эрг/см<sup>3</sup>, найденному ранее для этого же образца с помощью ферромагнитного резонанса при той же температуре [13]. Завышенное значение, полученное в работе [13], 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.

На рис. 7 представлено распределение кластеров MnSb по размерам, полученное из данных магнитно-силовой микроскопии (рис. 2), а также кривая  $f(E_a)$ , полученная в результате анализа полевых  $m(H)$  и временных  $m(t)$  зависимостей магнитного момента тонких пленок GaMnSb. Их корреляция свидетельствует о том, что зависимости  $m(H)$  и  $S(H)$  определяются логнормальным распределением кластеров MnSb по размерам (энергии магнитной анизотропии).

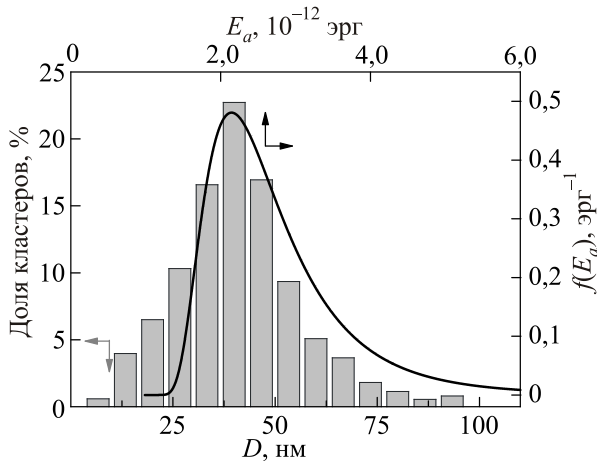


Рис. 7. Распределение кластеров MnSb по размеру, полученное из данных магнитно-силовой микроскопии, а также зависимость  $f(E_a)$ , полученная в результате анализа полевых и временных зависимостей магнитного момента тонких пленок GaMnSb.

#### 4. Выводы

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

Работа поддержана грантом Президента РФ МК-5754.2016.3. Авторы признательны Б.А. Аронзону за образцы и данные магнитно-силовой микроскопии. А.И. Дмитриев благодарен Р.Б. Моргунову — учителю, многолетней работой с которым обусловлен интерес к теме, обсуждаемой в статье.

1. 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).
2. А.И. Дмитриев, Р.Б. Моргунов, С.В. Зайцев, *ЖЭТФ* **139**, 367 (2011).
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. С. Тикадзуми, *Физика ферромагнетизма. Магнитные характеристики и практические применения*, Наука, Москва (1987).
6. M. Knobel, W.C. Nunes, L.M. Socolovsky, E. De Biasi, J.M. Vargas, and J.C. Denardin, *J. Nanosci. Nanotechnol.* **8**, 2836 (2008).
7. 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, *Неорг. матер.* **50**, 973 (2014).
8. А.А. Lotin, O.A. Novodvorsky, L.S. Parshina, E.V. Khaydukov, D.A. Zuev, O.D. Khramova, and V.Ya. Panchenko, *Appl. Phys. B* **104**, 565 (2011).
9. R. Coehoorn, C. Haas, and R.A. Groot, *Phys. Rev. B* **31**, 1980 (1985).
10. A. Hillion, A. Tamion, F. Tournus, O. Gaier, E. Bonet, C. Albin, and V. Dupuis, *Phys. Rev. B* **88**, 094419 (2013).
11. F. Tournus and A. Tamion, *J. Magn. Magn. Mater.* **323**, 1118 (2011).
12. J. Tejada, X.X. Zhang, and J.M. Hernandez, in: *Proc. of NATO ASI*, G.C. Hadjipanayis (ed.), Kluwer Academic Publishers, Amsterdam (1997), vol. 338, p. 221.
13. А.Д. Таланцев, О.В. Коплак, Р.Б. Моргунов, *ФТТ* **57**, 307 (2015).

Low-temperature magnetic viscosity in GaMnSb thin films, containing MnSb clusters

A.I. Dmitriev and S.A. Kostyuchenko

Time dependences of the magnetic moment  $m(t)$  of GaMnSb thin films, containing MnSb clusters, were measured. Straightening of  $m(t)$  curves in semi-logarithmic coordinates  $m(\ln t)$  was found. The slope of the  $m(\ln t)$  dependence corresponds to the magnetic viscosity  $S$ . It was found that the magnetic field dependence of the magnetic viscosity  $S(H)$  and the mag-

netic moment  $m(H)$  at low temperatures is determined by the log-normal distribution of the magnetic anisotropy energy of MnSb clusters.

PACS: 75.50.Pp Magnetic semiconductors;  
75.70.Ak Magnetic properties of monolayers and thin films;  
**75.75.-c** Magnetic properties of nanostructures;  
75.60.Jk Magnetization reversal mechanisms.

Keywords: thin films, diluted magnetic semiconductors, clusters.