

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 Mn₅Ge₃ [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 τ которой определяется законом Аррениуса:

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

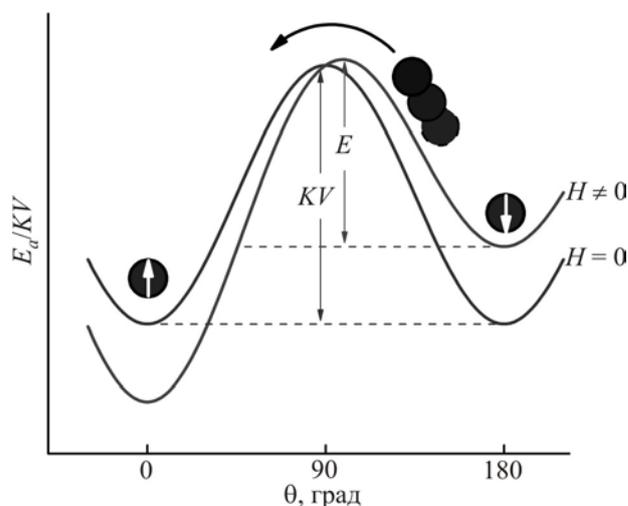


Рис. 1. Схема энергетического барьера E_a , преодолеваемого кластерами при перемангничивании, в нулевом магнитном поле и магнитном поле, отличном от нуля.

где $E_a = KV$ — энергия магнитной анизотропии (здесь K — константа магнитной анизотропии, V — объем кластера), τ_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 τ (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

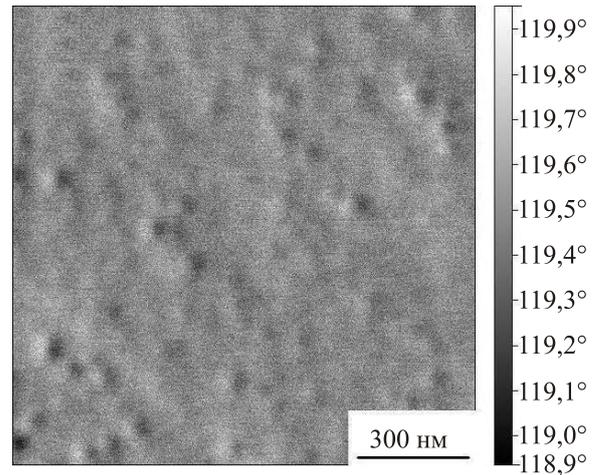


Рис. 2. Изображение поверхности тонкой пленки GaMnSb, полученное с помощью магнитно-силового микроскопа.

осаждения в условиях высокого вакуума при температуре 100 °С. В качестве подложек использовался монокристаллический Al_2O_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]:

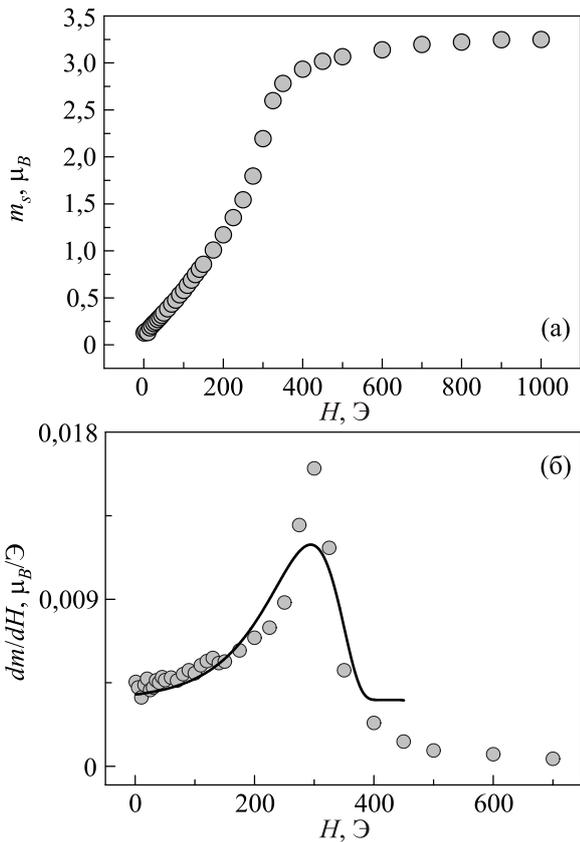


Рис. 3. (а) Зависимость магнитного момента образца от напряженности магнитного поля при температуре $T = 8$ К. (б) Полевая зависимость производной dm/dH . Сплошной линией показана аппроксимация.

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

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, $V_{lim} = 25k_B T / (1 - (H/H_a))^2$ — 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 σ — 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-

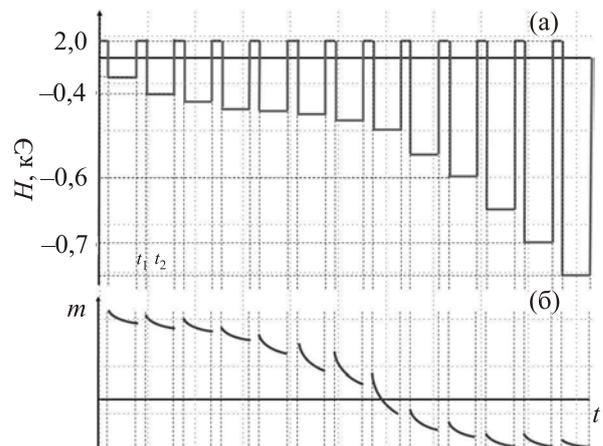


Рис. 4. (а) Схема переключения внешнего магнитного поля в экспериментах по измерению временных зависимостей магнитного момента. (б) Схематическое изображение изменения магнитного момента тонких пленок. Отмечены промежутки времен: $t_1 = 300$ с — длительность экспозиции образцов в магнитном поле $H =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

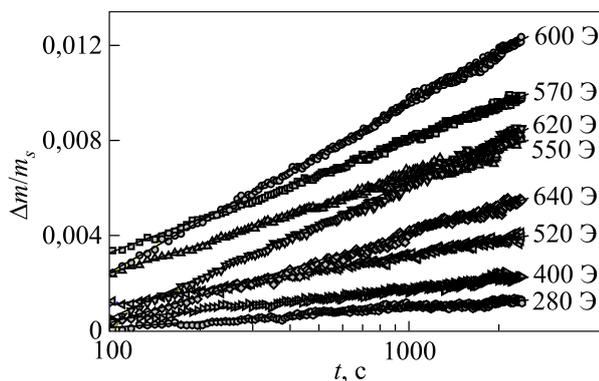


Рис. 5. Временные зависимости изменения магнитного момента $\Delta m(t)$, выраженного в единицах магнитного момента насыщения m_s , в магнитном поле различной напряженности, направленном против вектора магнитного момента образца, при температуре $T = 8$ К в полулогарифмических координатах. Сплошными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

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

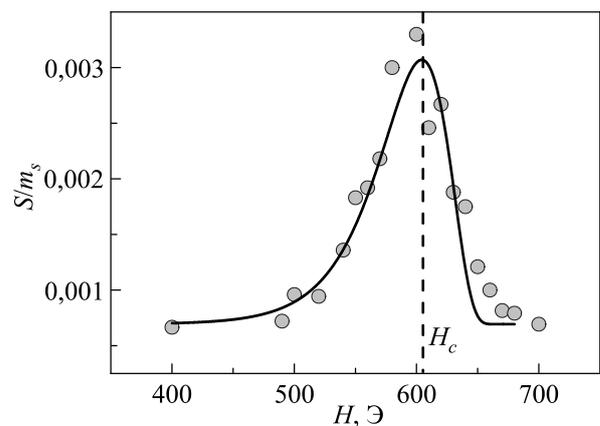


Рис. 6. Зависимость магнитной вязкости S , выраженной в единицах магнитного момента насыщения m_s , от напряженности магнитного поля при $T = 8$ К. Сплошной линией показана аппроксимация.

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(a)), 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/см³. Определенное здесь значение K при $T = 8$ К близко к значению $K = 14 \cdot 10^4$ эрг/см³, 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).

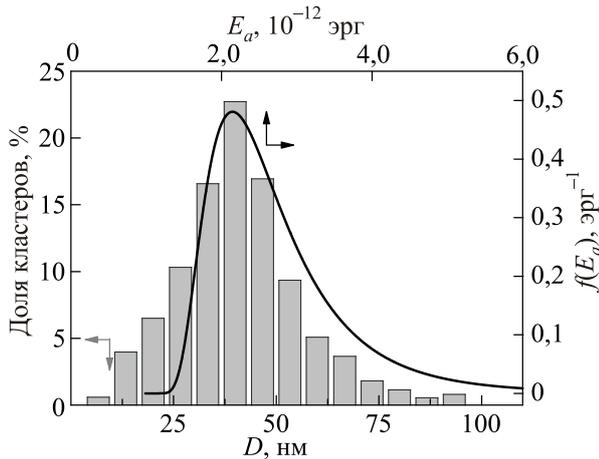


Рис. 7. Распределение кластеров MnSb по размеру, полученное из данных магнитно-силовой микроскопии, а также зависимость $f(E_a)$, полученная в результате анализа полевых и временных зависимостей магнитного момента тонких пленок GaMnSb.

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.