## 05,03

# Ферромагнетизм и микроволновое магнетосопротивление пленок GaMnSb

© А.Д. Таланцев<sup>1</sup>, О.В. Коплак<sup>1</sup>, Р.Б. Моргунов<sup>1,2</sup>

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

Черноголовка, Россия

<sup>2</sup> Московский государственный гуманитарный университет им. М.А. Шолохова,

Москва, Россия

E-mail: morgunov2005@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 25 августа 2014 г.)

Обнаружено влияние концентрации дырок на ферромагнетизм кластеров MnSb в пленках GaMnSb. Высокая концентрация дырок приводит к их туннелированию сквозь барьер Шоттки на границе кластер—кристаллическая решетка и изменению намагниченности кластеров. Микроволновое сопротивление пленок зависит от спиновой поляризации дырок, управляемой намагниченностью кластеров и внешним магнитным полем. Установлены параметры кристаллической анизотропии ферромагнитных кластеров и диполь-дипольного взаимодействия между ними.

Работа выполнена при поддерке РФФИ (проекты № 14-07-00408, 13-07-12027).

### 1. Введение

Интерес к магниторазбавленным полупроводникам (DMS) длительное время подогревался надеждой создания в них таких магнитоупорядоченных состояний, в которых спиновая поляризация магнитной примеси поддерживалась бы косвенным обменным взаимодействием, передаваемым носителями заряда. Однако величина обменного взаимодействия в созданных системах магниторазбавленных полупроводников всегда мала, вопервых, ввиду того, что концентрация растворенной примеси не превышает 1-2%, а остальная примесь агрегируется в кластеры, а во-вторых, потому, что при столь низких концентрациях соответствующие температуры Кюри не превышают 10 К. В результате, магнитные характеристики DMS не могут быть признаны удовлетворительными с точки зрения практического применения. В рамках описанного выше подхода, кластеризация примеси обычно признавалась вредным фактором, поскольку наличие ферромагнитных кластеров сплавов часто давало значительно больший вклад в намагниченность по сравнению с желаемым "чистым" магнетизмом DMS, становясь своего рода артефактом, приводящим к многочисленным заблуждениям. Однако, как показано далее, ферромагнитные нановключения в полупроводниковой матрице представляют самостоятельный интерес. Они могут быть прообразами спинтронических устройств, в которых спиновая поляризация носителей заряда и локальная намагниченность кластеров взаимосвязаны. Эта взаимосвязь может быть использована для создания приборов квантовой [1] и магнитной [2] логики, магниторезонансных наноразмерных спиновых инжекторов [3], а также устройств считывания, записи и хранения информации, основанных на аномальном эффекте Холла [4]. Увеличение концентрации носителей заряда до  $p \sim 10^{20} \,\mathrm{cm^{-3}}$  уменьшает барьер Шоттки и делает его сравнимым с эффективной длиной туннелирования носителей через барьер в пленках GaMnSb [5]. В результате можно ожидать изменений количества спинов и типа магнитного упорядочения в кластерах, а также соответствующих изменений магнитных свойств образцов. Возможен и обратный эффект — влияние намагниченности кластеров на спин-зависимое рассеяние дырок, которое проявляется в виде магнетосопротивления пленок.

В настоящей работе обнаружена зависимость параметров петли гистерезиса от концентрации носителей в серии тонких пленок GaSb (59 mol.%)-МnSb (41 mol.%). Обнаружено микроволновое магнетосопротивление, которое свидетельствует о взаимосвязи между намагниченностью кластеров и электрической проводимостью. Исследован ферромагнитный резонанс пленок. Целью работы является обнаружение синергизма магнитных и электрических свойств пленок, обусловленного спин-зависимыми процессами на границе ферромагнетик-полупроводник.

## 2. Методика экспериментов и приготовление образцов

Пленки GaSb–MnSb, содержащие 41 mol.% MnSb и 59 mol.% GaSb, толщиной d = 75-130 nm и площадью  $\sim 0.1-1$  cm<sup>2</sup> были получены из системы GaSb–MnSb эвтектического состава методом импульсного лазерного осаждения в условиях высокого вакуума ( $10^{-6}$  Torr) при температурах 50–350°С. Мишень распылялась излучением второй гармоники ( $\lambda = 532$  nm) Nd<sup>+3</sup>-лазера в режиме модуляции добротности (модель LQ529A). Подробно метод получения пленок был описан нами ранее [6]. В качестве подложек использовался монокристаллический Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001). Перед измерениями образцы

Удельное сопротивление  $\rho,$  концентрация p и подвижность дырок  $\mu$  в пленках №  $1{-}3$ 

Номер образца	$\rho, \ \Omega \cdot \mathrm{cm}$	$p, \ {\rm cm}^{-3}$	$\mu$ , cm <sup>2</sup> /V · s
1 2 3	$\begin{array}{c} 0.0176 \pm 0.0004 \\ 0.0124 \pm 0.0003 \\ 0.0006 \pm 0.0001 \end{array}$	$\begin{array}{c} (4.6\pm0.2)\cdot10^{18}\\ (7.5\pm0.3)\cdot10^{19}\\ (8.2\pm0.3)\cdot10^{19} \end{array}$	$75 \pm 3$ $6.7 \pm 0.3$ $108 \pm 5$

очищались в кипящем химически чистом метаноле. Средний размер кластеров, выявленный с помощью магнитной силовой микроскопии, составлял 120 nm. Магнитные свойства и микроволновое магнетосопротивление были измерены на серии из трех пленок толщиной 120 nm, характеристики которых приведены в таблице. В серийных измерениях с целью получения зависимостей магнитных свойств от электрических параметров пленок использовались аналогичные образцы с толщинами в диапазоне 75-135 nm, концентрациями носителей в диапазоне  $4.6 \cdot 10^{18} - 4.0 \cdot 10^{20}$  cm<sup>-3</sup> и удельными сопротивлениями 0.0006-0.0348  $\Omega$  · cm.

Химический состав приповерхностных слоев пленок был определен методом рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) в вакууме 10<sup>-9</sup> mbar с помощью спектрометра SPECS, PHOIBOS-Hsa 3500. Рентгеновское излучение было создано Мд-анодом (линия  $K_{\alpha}$  при 1253.6 eV). Фотоэлектроны регистрировались полусферическим детектором VSW диаметром 150 mm. Все энергии были откалиброваны по линии углерода 1s при 284.6 eV. Анализ и обработка спектров производились с помощью программы Casa XPS. Поскольку метод РФЭС дает информацию лишь о поверхностных слоях (< 1 nm), наблюдалось естественное присутствие кислорода и углерода в спектрах поверхности (см., например, рентгеновский фотоэлектронный (РФЭ) спектр образца № 1 на рис. 1, a). Относительные концентрации основных элементов на поверхности были следующими: Ga — 36.7%, Mn — 18.1%, Sb — 45.2% (без учета сигналов кислорода и углерода). На рис. 1, b представлен Mn 2p-уровень образца GaMnSb. Наблюдается спин-орбитальное расщепление (j = 3/2, 1/2)Mn 2p<sub>3/2</sub> и Mn 2p<sub>1/2</sub>. Для разложения на компоненты была взята часть спектра i = 3/2 потому, что часть, отвечающая j = 1/2, имела меньшую интенсивность и была уширена из-за перехода Костера-Кронига (Coster-Kronig decay). Линия Mn  $2p_{3/2}$  демонстрирует перекрытие сигналов от трех состояний: металлического марганца (Mn°), оксида марганца Mn<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (с ионами  $Mn^{3+}$ ) и кластеров MnSb (с ионами  $Mn^{2+}$ ) с соответствующими энергиями связи Mn° (638.9 eV), Mn<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (642.7 eV), MnSb (640.6 eV) (рис. 1, b). Со стороны больших энергий от основного пика наблюдается сателлит (647.5 eV), связанный с переносом заряда. Наличие сателлитов указывает на сильное кулоновское взаимодействие между Mn 3d-электронами и гибридизацию между Mn 3*d* и другими валентными орбиталями. Таким образом, наличие антиферромагнитной фазы металлического марганца, его оксида и ферромагнитных кластеров MnSb определяет магнитные свойства системы.

Намагниченность в постоянном магнитном поле M была измерена с помощью магнитометра (MPMS 5XL Quantum design). Измерения проводились при температурах от 2 до 350 К в магнитных полях до H = 50 kOe. Температурные зависимости M(T) были получены при нагревании образца от 2 до 300 К в диапазоне полей  $H_{\text{meas}}$  от 5 Oe до 10 kOe. Для каждого измерительного поля  $H_{\text{meas}}$  были получены две зависимости M(T), различающиеся режимом предварительного охлаждения образца: 1) ZFC — в нулевом поле; 2) FC — в поле H = 10 kOe. Сравнение пар зависимостей FC и ZFC, полученных при различных подмагничивающих полях, позволяет получить зависимость температуры блокировки от поля, приложенного во время измерения намагниченности образца.



**Рис. 1.** Обзорный РФЭ-спектр образца № 1 (a) и РФЭ-спектр линии марганца (b).

309

Ферромагнитный резонанс (ФМР) и магнетосопротивление были исследованы с помощью спектрометра Bruker ESP 300E в диапазоне X-band (частота  $\omega_0/2\pi = 9.38$  GHz) при частоте модуляции 100 kHz.

## 3. Результаты и обсуждение

3.1. Ферромагнетизм пленок. Температурные зависимости магнитного момента пленки № 2, охлажденной в нулевом магнитном поле (ZFC) и в поле 10 kOe (FC), представлены на рис. 2, а в случае измерительного магнитного поля 22 Ое. Температура, ниже которой начинается расхождение кривых ZFC и FC, называется температурой блокироки ( $T_b = 175 \, {
m K}$ на рис. 2, a) и характеризует ферромагнитные нанокластеры. В режиме FC намагниченность насыщения (эффективный магнитный момент) достигает значения  $2.5 \mu_{\rm B}$  при 2 K, что несколько меньше, чем ожидаемое значение 3.57  $\mu_{\rm B}$ , характерное для спина s = 5/2 ионов Mn<sup>2+</sup> в чисто ферромагнитных кластерах, сочетающих антиферромагнетизм вблизи поверхности [7]. Это можно объяснить тем, что исходные ферромагнитные кластеры в пленках as grown могут быть нестехиометрическими и иметь состав Mn<sub>1+r</sub>Sb, для которого эффективный магнитный момент вычисляется по эмпирической формуле  $\mu = (3.57 - 5.5x) \mu_{\rm B}$  [7]. Также следует заметить, что при данном неравновесном способе получения образцов заметная часть их может находиться в межузельной позиции [8], где они не вносят вклада в намагниченность, в отличие от ионов Mn, замещающих Ga [9]. Отжиг и в этом случае повышает концентрацию Mn в позиции Ga и увеличивает намагниченность.

Температурные зависимости намагниченности в изучаемых пленках могут быть объяснены с помощью двух сосуществующих магнитных фаз. Первая фаза отвечает за суперпарамагнитное распределение (SPAR)  $M_{\rm spar}$ , описываемое функцией Ланжевена. Второй фазой являются ферромагнитные нановключения MnSb с  $M_{\rm fer}$ , которые доминируют при высоких температурах. В рамках данной модели суммарная намагниченность M может быть вычислена по формуле

$$M(T) = M_{\text{spar}}(T) + \xi M_{\text{fer}}(T)$$
$$= N_{\text{spar}} \mu_{\text{B}} (\operatorname{cth}(\mu H/k_{\text{B}}T) - k_{\text{B}}T/\mu H) + \xi M_{\text{fer}}, (1)$$

где  $N_{\text{spar}} \mu_{\text{B}}$  — средняя намагниченность насыщения суперпарамагнитных частиц с эффективным магнитным моментом  $\mu$  и концентрацией  $N_{\text{spar}}$ ;  $\xi$  — доля ферромагнитных наночастиц. Аппроксимация зависимости M(T) формулой (1) (рис. 2, *a*) позволила определить долю ферромагнитных кластеров MnSb ~ 84%.

Температура блокировки зависит от магнитного поля, приложенного во время измерений (рис. 2, *b*). Влияние внешнего магнитного поля на температуру блокировки описано в литературе и объясняется наличием магнитного диполь-дипольного взаимодействия между



**Рис. 2.** *а*) Температурные зависимости магнитного момента, полученные для образца № 2, охлажденного в магнитном поле 1 Т (FC) и в нулевом магнитном поле (ZFC). *b*) Зависимость температуры блокировки  $T_b$  от измерительного поля. Сплошной линией показана аппроксимация, описанная в тексте.

кластерами и их неоднородностью [10, 11]. В настоящей работе наблюдается спрямление зависимости  $T_b(H)$  в полулогарифмической шкале, т. е.  $T_b(H) \sim \ln(H)$  (рис. 2, b). Подобная ситуация наблюдалась в [12], где в качестве основной причины указывалось широкое распределение энергетических барьеров перемагничивания кластеров по высоте. Другая возможная причина нестандартной зависимости  $T_b(H)$  может заключаться в том, что при приложении внешнего магнитного поля происходит делокализация носителей заряда, контролирующих температуру блокировки ферромагнитных кластеров.

Гистерезис намагниченности был измерен при температурах от 2 до 300 К. Типичные кривые для всего диапазона температур представлены на рис. 3, *a*. Намагниченность насыщения  $M_{sat} = 2.5 \mu_B$  в магнитных полях H > 500 Ое точно соответствует данным для температурной зависимости FC (рис. 2, *a*). Значение  $M_{sat}$  плавно уменьшается при росте температур до 300 К (рис. 3, *b*). Другие параметры петли гистерезиса (остаточная на0

0



Рис. 3. *а*) Гистерезис намагниченности пленки № 2 при температурах 150 (1), 30 (2), 2 К (3). *b*) Температурные зависимости намагниченности насыщения  $M_{\text{sat}}$  (1), остаточной намагниченности  $M_{\text{rem}}$  (2) и коэрцитивной силы  $H_c$  (3). Аппроксимации зависимостей  $M_{\text{rem}}(T)$  и  $H_c(T)$  показаны сплошными линиями и описаны в тексте.

*T*, K

100

200

0

300

магниченность и коэрцитивная сила) резко уменьшаются при нагреве (рис. 3, b). Как следует из рис. 3, b, экспериментальная зависимость  $H_c(T)$  не согласуется с теоретическими предсказаниями для ансамбля одинаковых невзаимодействующих частиц  $H_c \sim T^{1/2}$  [13]. Поэтому мы использовали аппроксимацию экспоненциальной функцией  $H_c = A \exp(-BT^{\alpha})$ , хорошо описывающей экспериментальные данные при  $\alpha = 0.6$  (рис. 3, *b*). Подобная зависимость  $H_c(T)$  была использована ранее для описания других магнитных систем: магнитной пленки граната [14], магнетиков на основе редкоземельных переходных металлов [15], FeZr, аморфных сплавов Dy<sub>60</sub>Fe<sub>40</sub> (Gd<sub>1-x</sub>Tb<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Cu [16,17]. В упомянутых системах, характеризуемых сильным ферромагнитным взаимодействием и хаотично распределенной магнитной анизотропией, магнитные моменты атомов коррелируют на малых расстояниях, в то время как на больших масштабах намагниченность стохастически изменяется в образце.

3.2. Взаимосвязь намагниченности и электрических свойств пленок GaMnSb. Для каждого образца были измерены намагниченности насыщения  $M_{sat}$ . На рис. 4 показаны зависимости намагниченности насыщения от концентрации заряженных носителей p как при комнатной температуре, так и при



**Рис. 4.** Зависимости намагниченности насыщения  $M_{\text{sat}}$  от концентрации заряженных носителей (дырок) p при T = 300 (a) и 2 K (b). Сплошными линиями показаны аппроксимации экспоненциальными функциями. Горизонтальными пунктирными линиями показаны теоретические значения  $M_{\text{sat}}$  [7]. c — зависимость намагниченности насыщения от толщины пленки d.

температуре T = 2 К. Было обнаружено, что образцы с более высокой концентрацией дырок обладают более высокой намагниченностью, причем высокая концентрация носителей приближает намагниченность насыщения к ожидаемому значению  $3.57 \,\mu_{\rm B}$  [7]. Это происходит, по-видимому, из-за уменьшения доли нестехиометрических кластеров *x* по мере проникновения дырок через барьер Шоттки в кластеры. Этот вывод подкрепляется и тем, что кратковременный отжиг образцов (30 min при  $300^{\circ}$ С) также ведет к приближению  $M_{\rm sat}$  к расчетному значению  $3.57 \,\mu_{\rm B}$ . Поэтому зависимость  $M_{\rm sat}(p)$  демонстрирует важную роль носителей заряда в формировании ферромагнетизма кластеров.

Одной из известных причин зависимости намагниченности от концентрации носителей заряда является туннелирование заряженных частиц через барьеры Шоттки между кластерами и полупроводниковой кристаллической решеткой [18,19]. В рамках данного механизма должна наблюдаться линейная зависимость  $M_{\rm sat}(p)$ . Например, линейная зависимость  $M_{\rm sat}(p)$  была экспериментально обнаружена в случае контролируемого барьера Шоттки в пленках In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, легированных Мо (3-10 at.%) [20]. В GaSb с магнитными нановключениями взаимодействию между магнитными нановключениями и дырками препятствует барьер Шоттки, окружающий ферромагнитные наногранулы. Взаимодействие становится возможным, когда толщина барьера Шоттки становится сравнимой с длиной проникновения дырок под барьером. Это условие выполняется при высоких концентрациях дырок  $p \sim 10^{20} \,\mathrm{cm}^{-3}$  [5,21]. Поскольку концентрация дырок в наших образцах составляет  $p \sim 10^{20} \, {
m cm^{-3}}$ , можно заключить, что зависимость ширины барьера Шоттки от концентрации не является причиной нелинейного поведения  $M_{sat}(p)$ . Этой причиной может быть то, что параметры барьера контролируются другим дополнительным механизмом. В [22] показано, что в парамагнитно-ферромагнитных гранулярных гибридах GaAs: Mn/MnAs доминирует низкотемпературный магнитотранспорт, управляемый спинспиновым взаимодействием между носителями заряда и кластерами на интерфейсе кластер-матрица. В данной работе установлено, что образцы проявляют нелинейную взаимосвязь между концентрацией дырок p и намагниченностью насыщения  $M_{sat}$  (рис. 4, a, b). Для аппроксимации этой зависимости был использован закон  $M_{\rm sat}(p) \sim 1 - \exp\left[(p-p_0)/\tau\right]^{\beta}$  с постоянными  $\tau = 5 \cdot 10^{19} \,{\rm cm}^{-3}$  при  $T = 300 \,{\rm K}$  и  $\tau = 1.5 \cdot 10^{19} \,{\rm cm}^{-3}$ при T = 2 К. Этот выбор связан с тем, что по мере увеличения концентрации дырок в объеме все большее их количество проникает в ферромагнитные кластеры, меняя степень ионизации ионов Mn. Предельное значение степени ионизации наблюдается для ионов Mn<sup>2+</sup>, для которых имеет место наибольший спин s = 5/2. Дальнейшее увеличение концентрации дырок не приводит к изменению валентного состояния марганца, что выражается в виде насыщения на зависимости  $M_{sat}(p)$ .

Отметим, что уменьшение  $\tau$  при низких температурах может свидетельствовать о термоактивационном характере преодоления барьера дырками на границе кластер—матрица.

Намагниченность насыщения чувствительна также и к толщине пленки d. На рис. 4, c представлена зависимость  $M_{\rm sat}(d)$  при 300 К. Толщина пленки ограничивает размеры кластеров MnSb. Чем меньше кластеры, тем большее значение имеют интерфейс кластеров и намагниченность слоя на границе полупроводник—ферромагнетик.

3.3. Микроволновое магнитосопротивление и ферромагнитный резонанс. Ориентационная зависимость спектра ФМР была получена для ориентации магнитного поля вне плоскости образца. Угол  $\theta = 0^{\circ}$  соответствует перпендикулярной ориентации поля по отношению к образцу. Помимо измерения резонансного сигнала, ФМР спектрометр был использован для исследования нерезонансного поглощения микроволновой мощности, вызванного магнетосопротивлением образца. В [23,24] было показано, что для образцов с низким сопротивлением  $\rho$  (значительно меньшим сопротивления микроволнового тракта спектрометра 190 $\Omega$ ) поглощаемая мощность *P* линейно зависит от сопротивления и является функцией магнитного поля *H*:  $P \sim \rho(H)$ . Соответственно производная поглощаемой мощности, измеряемая при наличии модуляции, пропорциональна производной от сопротивления образца  $dP/dH \sim d\rho(H)/dH$ .

Обсудим сначала нерезонансную часть микроволнового поглощения, связанную с магнетосопротивлением образца. В малых магнитных полях производная нерезонансного поглощения была отрицательной dP/dH < 0 (рис. 5, *a*). Аппроксимация этой части магнетосопротивления, резко уменьшающейся с ростом магнитного поля, была произведена с помощью формулы  $dP/dH = AH^{q-1}\exp((BH)^q)$ , где A и B — не зависящие от поля коэффициенты. Подобная аппроксимация используется для описания спин-зависимой прыжковой проводимости в сильно разупорядоченных системах и была предложена Эфросом и Шкловским в виде формулы  $\Delta \rho / \rho = A(1 - \exp[(BH)^q])$  [25]. Производная проходит через минимум при H = 2 kOe (рис. 5, *a*). В сильных полях магнетосопротивление аппроксимировали функцией  $dP/dH = CH^f$ , где C = const. Численные значения А и С зависят от геометрии образца и расположения в резонаторе, поэтому не могут быть использованы для обсуждения его физических свойств. Однако константы f и q отражают физическую природу магнетосопротивления, как было показано в [24]. Для ориентации образца параллельно магнитному полю были получены значения  $q = 2.0 \pm 0.6$  и  $f = 0.8 \pm 0.2$ .

Низкополевая часть зависимости dP/dH(H) (до минимума при 2 kOe), вероятнее всего, возникает в результате зеемановского расщепления состояний носителей заряда, вырожденных в отсутствие магнитного



Рис. 5. *а*) Первая производная микроволнового поглощения как функция магнитного поля для ориентации магнитного поля спектрометра в плоскости образца (*I*) и перпендикулярно плоскости образца № 3 (*2*) при 100 К. Сплошной линией *3* показана аппроксимация зависимости dI/dH(H) формулой, описанной в тексте. *b*) Ориентационная зависимость резонансного поля сигнала ферромагнитного резонанса пленки № 3 при 100 К. Угол 0° соответствует направлению магнитного поля спектрометра перпендикулярно плоскости образца.

поля. В магнитном поле вырождение снимается, изменяя подвижность, плотность состояний или вероятность прыжков в прыжковой проводимости [7]. В рамках этой модели величина коэффициента *B* должна составлять  $2.7e^2/k\varepsilon a_B T = 3.32 \cdot 10^{-4} \text{ Oe}^{-1}$ , где  $\varepsilon \sim 15$  — диэлектрическая проницаемость,  $a_B \sim 10^{-10}$  m — радиус Бора. Это хорошо согласуется со значением  $B = 3.3 \cdot 10^{-4} \pm 3 \cdot 10^{-5} \text{ Oe}^{-1}$ , полученным из аппроксимации при T = 100 K (рис. 5, *a*). При отклонении магнитного поля от нормали к пленке обе части магнетосопротивления (низко- и высокополевая) исчезают, что может означать уменьшенную подвижность носителей заряда в направлении, перпендикулярном пленке.

Параметр f, характеризующий высокополевую (после минимума при 2 kOe) квазилинейную часть зависимости dP/dH(H), также был определен из ее аппроксимации

 $f = 0.46 \pm 0.05$  при  $\theta = 0^{\circ}$ . Это значение f близко к величине показателя степени, который имеет место при лоренцевом магнетосопротивлении, существующем в большинстве металлов и полупроводников в результате орбитального движения носителей заряда в магнитном поле. Отклонение величины f от единицы типично для проводящих систем уменьшенной размерности, а также для систем с высокой концентрацией магнитной примеси. Высокий уровень легирования и сильная разупорядоченность пленок создают условия для спинзависимого рассеяния примеси на магнитных кластерах. Теоретические представления об этом механизме рассеяния подробно описаны в [25,26].

Помимо нерезонансного поглощения в пленках наблюдался также резонансный сигнал ферромагнитных кластеров MnSb в виде сравнительно узкого пика (рис. 5, a), положение которого зависело от ориентации магнитного поля спектрометра по отношению к пленке (рис. 5, a, b). Отметим, что в ферромагнитном состоянии вплоть до комнатной температуры и выше в кластерах возбуждается ферромагнитный резонанс (коллективная прецессия всех спинов кластера, связанных обменным взаимодействием). Поэтому сверхтонкое взаимодействие не дает расщепления линий в спектре, будучи в среднем равным нулю. Доля парамагнитной примеси Mn<sup>2+</sup>, по-видимому, значительно меньше, чем тех ионов Mn<sup>2+</sup>, которые включены в состав кластеров. Поэтому в спектре отсутствует характерная шестерка линий, обычно наблюдаемая в спектрах парамагнитного резонанса ионов Mn<sup>2+</sup>. Угловая зависимость резонансного поля ферромагнитного резонанса представлена на рис. 5, b. Значение резонансного магнитного поля 3.45 kOe оказывается близким к тому, которое соответствует g-фактору, равному 2, при магнитном поле, направленном перпендикулярно пленке  $(\theta = 0^{\circ})$ , а наибольшие отклонения резонансного поля от этого значения наблюдаются, если магнитное поле лежит в плоскости пленки (рис. 5, b). К такому же выводу можно прийти, анализируя зависимости M(H), полученные в перпендикулярной и параллельной ориентациях магнитного поля по отношению к образцу (рис. 6).

Если воспользоваться формулами Киттеля для сплошной намагниченной пленки с легкой осью в плоскости пленки

$$\omega_0/\gamma = \left(H_{
m res\perp}(H_{
m res\perp} + 4\pi M_z)
ight)^{1/2}$$
при  $heta = 0^\circ,$   
 $\omega_0/\gamma = H_{
m resll} - 4\pi M_z$ при  $heta = 90^\circ,$ 

то учет поля размагничивания должен дать резонансное поле H = 3424 Ое при  $\theta = 90^{\circ}$ , т.е. значительно выше наблюдаемого значения (рис. 5, *b*). Следовательно, не анизотропия пленки, а кристаллическая анизотропия ферромагнитных кластеров либо конфигурационная анизотропия, возникающая из-за диполь-дипольного взаимодействия между кластерами, вносит главный вклад в угловую зависимость резонансного поля.



Рис. 6. Намагниченность образца № 3 в двух ориентациях поля при температуре 300 К. Светлые символы соответствуют ориентации поля в плоскости образца, темные — перпендикулярно плоскости образца.

Зависимость резонансного поля ферромагнитной пленки кубической симметрии от полярного  $\theta$  и азимутального  $\phi$  углов с учетом констант кристаллической анизотропии второго  $K_{2\perp}$ ,  $K_{2\parallel}$  и четвертого  $K_4$  порядков следует из магнитной части свободной энергии, которая запишется в виде

$$E = -\mathbf{H}\mathbf{M} - (K_{2\perp} - 2\pi M^2)\cos^2\theta + K_{2\parallel}\sin^2\theta\cos^2(\varphi - \varphi_{2\parallel}) + E_4(K_4, \theta, \varphi), \quad (2)$$

где *М* — намагниченность насыщения, а энергия четвертого порядка анизотропии равна

$$E_4 = -\frac{1}{2} K_4 \left[ \cos^4 \theta + \frac{1}{4} \left( 3 + \cos 4\varphi \right) \sin^4 \theta \right].$$
 (3)

Резонансная угловая частота  $\omega$  запишется в виде

$$\binom{\omega}{\gamma}^{2} = \frac{1}{M^{2}} \left[ E_{\theta\theta} \left( \frac{E_{\varphi\phi}}{\sin^{2}\theta} + \frac{\cos\theta}{\sin\theta} E_{\theta} \right) - \left( \frac{E_{\theta\phi}}{\sin\theta} - \frac{\cos\theta}{\sin\theta} \frac{E_{\phi}}{\sin\theta} \right)^{2} \right], \quad (4)$$

где  $E_{\phi\phi}$ ,  $E_{\theta\phi}$ ,  $E_{\theta}$  и  $E_{\phi}$  — производные от энергии (1) по соответствующим углам. В результате дифференцирования соотношений (2) и (3) и подстановки в (4) получим условие для резонансного поля  $H_{res}$ 

$$(\omega_0/\gamma)^2 = \left(H_{\rm res}\cos(\theta - \theta_{\rm B}) - H_{\rm eff}\cos^2\theta\right) \\ \times \left(H_{\rm res}\cos(\theta - \theta_{\rm B}) - H_{\rm eff}\cos^2\theta + H_{2\parallel}\right), \quad (5)$$

в котором  $H_{\text{eff}} = (-2K_{2\perp}/M_S) + 4\pi M_S$  — эффективное поле,  $M_S = 190 \text{ Oe}$  — величина намагниченности насыщения, пересчитанная на единицу объема

Физика твердого тела, 2015, том 57, вып. 2

пленки. Вклад анизотропии в плоскости образца (inplane) пренебрежимо мал по сравнению с анизотропией относительно полярного угла (out-of-plane). В этом приближении получена аппроксимация формулой (5) угловой зависимости на рис. 5, b, которая позволила определить  $H_{\rm eff} = 940\,{\rm Oe}$  и константы кристаллической анизотропии  $K_{2\perp} = 1.38 \cdot 10^5 \text{ erg/cm}^3$ ,  $K_{2\parallel} = 0$ ,  $K_4 = -0.285 \cdot 10^{-5} \text{ erg/cm}^3$ . Хорошее согласие между экспериментальными данными и теоретическими предсказаниями для тонкой пленки кубической симметрии с дополнительной одноосной анизотропией в плоскости пленки означает, что между ферромагнитными кластерами имеется значительное диполь-дипольное взаимодействие, приводящее к тому, что магнитные свойства образцов сходны скорее с однородно намагниченной пленкой, чем с магнитными свойствами ансамбля индивидуальных невзаимодействующих кластеров.

3.4. Динамика перемагничивания пленок. Медленная релаксация намагниченности пленок была исследована при 300 К путем переключения внешнего магнитного поля от значения  $-500 \,\mathrm{Oe} = -H_c$  к значению  $+500 \,\mathrm{Oe} = +H_c$  с последующим измерением зависимости магнитного момента образца от времени (рис. 7, a, b). Первая точка на рис. 7, a, b при t = 0измеряется при уже установившемся магнитном поле +500 Ое, поэтому магнитный момент образца не претерпевает изменения знака в процессе релаксации намагниченности. Из рис. 7, а следует, что релаксация намагниченности не подчинялась экспоненциальной зависимости  $M(t) = A + B \exp(-t/\tau_0)$ , предсказываемой в рамках модели Стонера-Вольфарта для однодоменных частиц с одинаковым барьером перемагничивания [27]. Это объясняется тем, что разброс размеров ферромагнитных кластеров и соответствующих энергий перемагничивания был слишком велик. В таких случаях для описания динамики перемагничивания обычно используют зависимость

$$M(t) = S \ln(t + t_0) + C.$$
 (6)

Феноменологическая зависимость (6), полученная в предположении широкого распределения барьеров перемагничивания по высоте [28], хорошо описывает динамику перемагничивания исследуемых пленок с магнитной вязкостью  $S = 10^{-5}$  emu, временем задержки, необходимой для переключения поля в магнитометре,  $t_0 = 100.5$  s и константой  $C = 2 \cdot 10^{-5}$  emu, характеризующей исходную намагниченность образца в момент старта перемагничивания (при t < 0) (рис. 7, *b*). Необходимо отметить, что экспериментальная зависимость M(t) так же хорошо аппроксимируется в рамках иных ранее предложенных моделей, в частности двумя экспоненциальными зависимостями, суммой экспоненциальной и гиперболической зависимостей. Однако формула (6) нам показалась наиболее приемлемой, поскольку только она давала систематические зависимости параметров аппроксимации от температуры. В частности, согласно [29], физический



Рис. 7. Зависимость магнитного момента M пленки № 3 от времени t при переключении внешнего магнитного поля от -500 до +500 Ое при T = 300 К в полулогарифмическом (a) и линейном (b) масштабах. Сплошной линией на части b показана аппроксимация логарифмической зависимостью. c — зависимость относительного прироста магнитного момента  $\Delta M/M_{\text{sat}}$  по окончании измерений от температуры T, при которой наблюдается релаксация намагниченности.

смысл параметра S в этой формуле может быть истолкован как отношение S = T/U (U — средняя высота потенциального барьера), что делает понятным наличие температурной зависимости относительного изменения магнитного момента  $\Delta M/M_{\rm sat}$  по окончании измерений при t = 3600 s и отсутствие насыщения на зависимости M(t). Пользуясь этой интерпретацией, мы приходим к выводу, что потенциальный барьер U экспоненциально зависит от температуры, что согласуется с результатами, полученными в [29], и означает, что временная зависимость диполь-дипольного взаимодействия играет доминирующую роль в релаксации намагниченности, значительно превышая вклад магнитной релаксации в самих нанокластерах.

#### 4. Выводы

1. Установлено, что магнитные свойства тонких пленок GaMnSb определяются кристаллической анизотропией и магнитным диполь-дипольным взаимодействием между ними. Определены константы анизотропии полупроводниковой пленки с кластерами MnSb. Широкий разброс энергий активации перемагничивания кластеров приводит к специфическим зависимостям коэрцитивной силы от температуры и намагниченности пленок от времени.

2. Обнаружено влияние концентрации носителей на намагниченность ферромагнитных кластеров MnSb. Зависимость намагниченности кластеров от концентрации дырок обусловлена туннелированием носителей заряда через барьеры Шоттки и устранением нестехиометрии кластеров, которые в общем случае содержат ионы  $Mn^0$ ,  $Mn^{2+}$ ,  $Mn^{3+}$ .

3. Спиновая поляризация дырок и их рассеяние на ферромагнитных кластерах приводят к микроволновому магнетосопротивлению пленок, которое включает две компоненты: в магнитных полях, меньших 2 kOe, наблюдается рассеяние дырок по механизму Эфроса-Шкловского, а в сильных магнитных полях имеет место магнетосопротивление, обусловленное зеемановским расщеплением спиновых уровней носителей заряда.

Авторы признательны Б.А. Аронзону за обсуждение работы, а также О. Новодворскому и Л. Паршиной за образцы, предоставленные для исследований.

#### Список литературы

- D.A. Allwood, X. Gang, R.P. Cowburn. Appl. Phys. Lett. 85, 2848 (2004).
- [2] J. Tejada, E.M. Chudnovsky, E. del Barco, J.M. Hernandez, T.P. Spiller. Nanotechnology 12, 181 (2001).
- [3] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, G.E.W. Bauer. Phys. Rev. Lett. 88, 117 601 (2002).
- [4] Y. Bason, L. Klein, J.B. Yau, X. Hong, J. Hoffman, C.H. Ahn. J. Appl. Phys. 99, 08R 701 (2006).
- [5] V.V. Rylkov, B.A. Aronzon, K.I. Maslakov, Yu.A. Danilov, V.P. Lesnikov, V.V. Podol'skiĭ, Yu.N. Drozdov. ℋϿΤΦ 100, 742 (2005).

- [6] 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).
- [7] R. Coehoorn, C. Haas, R.A. Groot. Phys. Rev. B **31**, 1980 (1985).
- [8] T. Jungwirth, J. Sinova, J. Mašek, J. Kučera, A.H. MacDonald. Rev. Mod. Phys. 78, 809 (2006).
- [9] С.В. Гуденко, Б.А. Аронзон, В.А. Иванов. Письма в ЖЭТФ 82, 591 (2005).
- [10] D. Pajić, K. Zadro, R. Ristić, I. Živkovic, Ž. Skoko, E. Babić.
   J. Phys.: Cond. Matter 19, 296 207 (2007).
- [11] Y.D. Zhang, J.I. Budnick, W.A. Hines, C. L. Chien, J.Q. Xiao. Appl. Phys. Lett. 72, 2053 (1998).
- [12] G.F. Goya, M.P. Morales. J. Metastable Nanocryst. Mater. 20–21, 673 (2004).
- [13] C.P. Bean, J. D. Livingston. J. Appl. Phys. 30, S120 (1959).
- [14] G. Vértesy, I. Tomáš. Acta Phys. Slovaca 48, 663 (1998).
- [15] J. Tejada, X.X. Zhang, E.M. Chudnovsky. Phys. Rev. B 47, 14977 (1993).
- [16] A. Cresswell, D.I. Paul. J. Appl. Phys. 67, 398 (1990).
- [17] D.A. Read, T. Moyo, G.C. Hallan, J. Magn. Magn. Mater.
  44, 279 (1984); K.J. Buschow, A.M. Kraan, J. Magn. Magn.
  Mater. 22, 220 (1981); C. Jayaprakash, C. Kirkpatrick. Phys.
  Rev. B 21, 4072 (1980); D.R. Denholm, T.J. Sluckin. Phys.
  Rev. B 48, 901 (1993).
- [18] T. Dietl, H. Ohno. Rev. Mod. Phys. 86, 187 (2014).
- [19] P.S. Dutta, H.L. Bhat, V. Kumar. J. Appl. Phys. 81, 5821 (1997).
- [20] C. Park, C. You, K. Jeon, S. Shin. Appl. Phys. Lett. 100, 222 409 (2012).
- [21] S. Sze. Physics of semiconductor devices. 2nd ed. Wiley, NY (1981). 832 p.
- [22] C. Michela, C.H. Thiena, S. Yea, P.J. Klara, W. Heimbrodta, S.D. Baranovskiia, P. Thomasa, M. Lampalzera, K. Volza, W. Stolza, B. Goldlückeb. Superlatt. Microstruct. **37**, 321 (2005).
- [23] A.I. Veinger, A.G. Zabrodskii, T.V. Tisnek. Phys. Status Solidi B 230, 107 (2002).
- [24] R. Morgunov, M. Farle, M. Passacantando, L. Ottaviano, O. Kazakova. Phys. Rev. B 78, 045 206 (2008).
- B. I. Shklovskii, B.Z. Spivak. In: Hopping transport in solids / Eds M. Pollak, B. Shklovskii. Elsevier, Amsterdam (1991).
   P. 271.
- [26] M.M. Parish, P.B. Littlewood. Nature 426, 162 (2003).
- [27] S.J. Collocott, V. Neu. J. Phys. D 45, 035002 (2012).
- [28] R. Street, J.C. Woolley. Proc. Roy. Soc. A 62, 562 (1949).
- [29] P. Zhang, F. Zuo, F.K. Urban, A. Khabari, P. Griffiths, A. Hosseini-Tehrani. J. Magn. Magn. Mater. 225, 337 (2001).