



UDK:537.621.5

Azamatbek ARSLANOV,

O'zbekiston Milliy universiteti tayanch doktoranti

E-mail: azamat20296@gmail.com

Rafael NUSRETOV,

Toshkent davlat texnika universiteti O'zbek-Yapon yoshlar markazi katta ilmiy xodimi

Javohir XUDOYQULOV,

O'zbekiston Milliy universiteti magistranti

Shavkat YULDASHEV,

O'zbekiston Milliy universiteti Nanotexnologiyalarni rivojlantirish markazi laboratoriya mudiri

*O'zbekiston Respublikasi Innovatsion rivojlanish vazirligi huzuridagi Ilg'or texnologiyalar markazi katta ilmiy xodimi, f.m.f.n.
O.M. Tursunqulov taqrizi asosida*

WEAK FERROMAGNETISM IN $Zn_{1-x}Co_xO$

Annotation

To study the origin of ferromagnetism in $Zn_{1-x}Co_xO$ thin films the thermal diffusivity, additionally, to the magnetization measurements has been conducted. The thin films of $Zn_{1-x}Co_xO$ ($x = 0.03$) were deposited on Si (100) substrate by using ultrasonic spray pyrolysis. Magnetization $M(H)$ measurements at low temperature show a hysteresis loop which indicates an existence of ferromagnetic ordering in $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$. However, the magnetic moment per Co ion is much lower than expected. A comparison of $M(T)$ measured at zero-field-cooled (ZFC) and field-cooled (FC) conditions shows a superparamagnetic-like behavior and the blocking temperature is about 130K. Temperature dependence of the thermal diffusivity of $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ shows a pronounced lambda shaped minimum at 130K, which indicates an existence of a second-order phase transition at this temperature. The weak ferromagnetism in the $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ with the Curie temperature of 130 K is ascribed to the uncompensated magnetic moment at the surface of CoO nanoclusters.

Key words: Diluted magnetic semiconductor, thermal diffusivity, thin magnetic film, ultrasonic spray pyrolysis.

СЛАБЫЙ ФЕРРОМАГНЕТИЗМ В $Zn_{1-x}Co_xO$

Аннотация

Для того чтобы изучить природу ферромагнетизма в тонких пленках $Zn_{1-x}Co_xO$ была проанализирована их температуропроводность в добавление к измерениям намагниченности. Тонкие пленки $Zn_{1-x}Co_xO$ ($x = 0.03$) были осаждены на кремниевые подложки с помощью ультразвукового спрея пиролиза. Измерение намагниченности $M(B)$ при низкой температуре показало наличие кривой гистерезиса, что указывает на наличие ферромагнитного упорядочения в $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$. Однако, величина магнитного момента на один ион кобальта была намного меньше чем ожидалось. Сравнение температурных зависимостей намагниченности $M(T)$, измеренных при охлаждении в отсутствие магнитного поля и при охлаждении в магнитном поле показало суперпарамагнитное поведение с температурой блокировки около 130K. Температурная зависимость температуропроводности $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ показала наличие лямбда образного минимума при 130K, что указывает на существование фазового перехода второго рода при этой температуре. Слабый ферромагнетизм в $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ с температурой Кюри 130K может быть объяснен некомпенсированным магнитным моментом на поверхности CoO наносклатеров.

Ключевые слова: Магнитный полупроводник, температуропроводность, тонкая магнитная пленка, пиролиз ультразвуковым распылением.

$Zn_{1-x}Co_xO$ DAGI KUCHSIZ FERROMAGNETIZM

Annotatsiya

Ushbu ishda $Zn_{1-x}Co_xO$ yupqa qatlamining issiqlik diffuziyasi va magnitlanish o'chashlari natijalari tahlil qilingan. $Zn_{1-x}Co_xO$ ($x=0.03$) yupqa qatlami kremniy taglikka ultra tovushli spray periold usulida o'stirilgan. Past temperaturada $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ dagi magnitlanish o'chashlarida gesterezis mavjudligidan ferromagnit tartiblanish borligini ko'rish mumkin. Ammo, har bitta Co ioniga to'g'ri keluchi magnit moment kutilganidan ancha past ekani malum bo'ldi. Magnitlanishning temperaturaga bog'lanishi o'rganilyotganda magnit maydoni va magnit maydonisiz sovutilish natijalari 130 K da paramagnit-ferromagnit faza o'tishini ko'rsatdi. $Zn_{1-x}Co_xO$ ning issiqlik diffuziyasi natijalari kutilganidek aynan 130 K da lamda shaklidagi minimumga erishdi. Bunday past temperaturadagi ferromagnetizm $Zn_{1-x}Co_xO$ ning sirtidagi kompensatsiya bo'lmagan CoO klasterlar mavjudligi orqali tushuntirish mumkin.

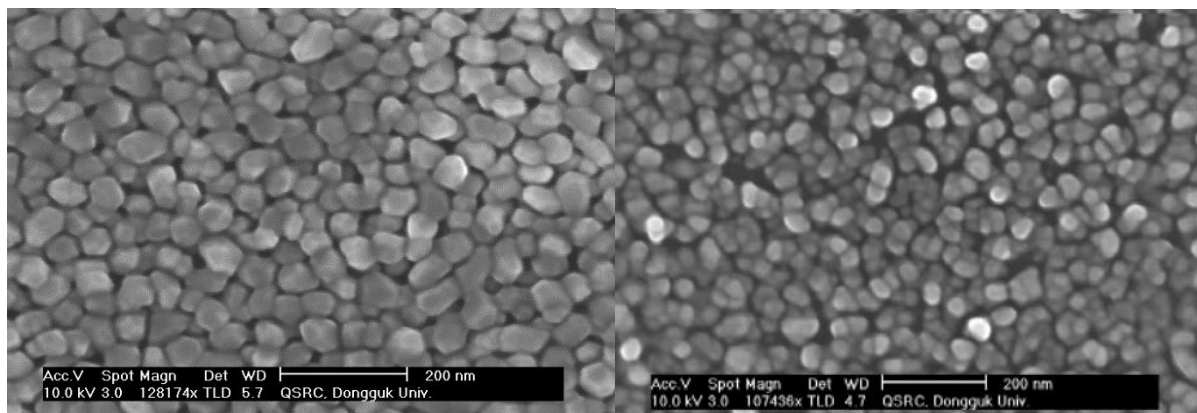
Kalit so'zlar: Magnit yarimo'tkazgichlar, issiqlik o'tkazuvchanligi, yupqa magnit qatlami, ultra tovushi spray perioldis.

Kirish. ZnO asosidagi magnit yarimo'tkazgichlar yuqori temperaturali ferromagnit yarimo'tkazgichlar uchun asosiy material sifatida ko'rilmogda. Shu sabab $Zn_{1-x}Co_xO$ ni o'rganish ancha dolzarb mavzuga aylangan bo'lsada, hozirgacha turli olimlar tomonida turli xulosalar aytilmogda. Bazi maqolalarda $Zn_{1-x}Co_xO$ xona temperaturasida ferromagnetik fazada bo'lishini ko'rsatsada [2], negadir har bir ionga to'g'ri keluvchi magnit momenti bu qadar kichik bo'lishini tushuntira olishmagan. Bundan tashqari ferromagnetizm hosil bo'lishi uchun $Zn_{1-x}Co_xO$ ga hech qanday qo'shimcha kirishmalar kiritilmagan va tok tashuvchilar defektlar hisobiga paydo bo'lishi aytilgan[5].

Mavzuga oid adabiyotlar tahlili. Shu bilan birga yana ko'plab maqolalarda $Zn_{1-x}Co_xO$ materialida xona temperaturasida ferromagnetizm kuzatilmagani ko'rsatilgan [6]. Co bilan legirlangan ZnO yupqa qatlamini olishda Sol-Gel, kimyoviy gaz orqali o'stirish, pulstsatsiyalangan lazerli o'tkazish va boshqa ko'plab usullardan foydalanishgan. Ultra tovushli spray perioldiz usuli esa juda kam ishlatilgan.

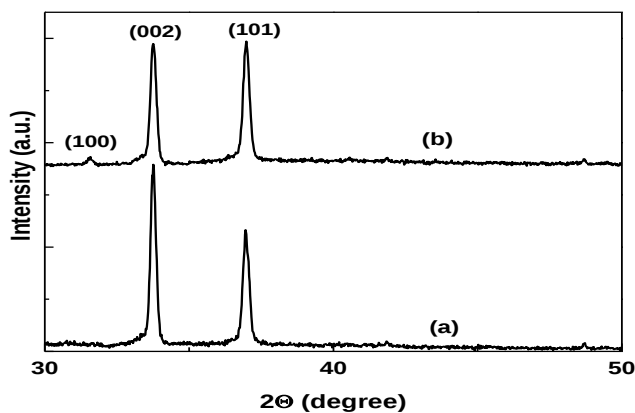
Ushbu ishda ultra tovushli spray perioldiz usulida olingan $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ dagi kuchsiz ferromagnetizm o'lchashlari natijalarini ko'rsatilgan. Yani, magnitlanishning temperaturaga bog'lanishi va issiqlik diffuziyasi o'lchangan. Chunki issiqlik diffuziyasi faza o'tishidagi kritik holatlarni o'rganishda asosiy metod hisoblandi. Issiqlik sig'imi va diffuziya koeffitsienti o'zaro teskari $C = K/\rho D$ (ρ -zichlik, K -issiqlik o'tkazuvchanlik) bog'lanishga ega[8]. Shu sabab ular faza o'tishida bir xil kritik xususiyatlarga ega bo'ladi. Demak, issiqlik diffuziyasini o'lchash orqali faza o'tishini kuzatish va kuryi temperaturasini aniqlash mumkin bo'ladi.

Tadqiqot metodologiyasi. $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ yupqa qatlami ultra tovushli spray perioldiz usulida Si taglikka o'stirilgan. Kerakli kimyoviy aralashmani tayyorlashda toza suvda eruvchi rux va kobalt atsetatlar ishlatilgan. O'stirish davomida taglikning temperaturasi $400^{\circ}C$ da ushlab turilgan. Elektron mikroskopda olinga tasvirlardan qatlam qalinligi 200 nm ekani o'lchangan. Solishtirish uchun Co kiritilmagan ZnO qatlami ham xuddi shunday qalinlikda o'stirilgan. Magnitlanishning tashqi magnit maydonga bog'likligi $M(B)$ va magnitlanishning temperaturaga bog'lanishi $M(T)$ SQUID magnetometrdagi o'lchangan. Namunaning strukturaviy tuzulishini rentgen spektrometrida kuzatilgan.



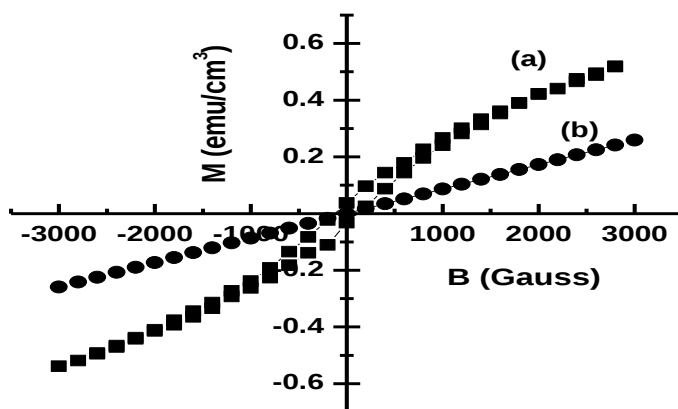
1-rasm. Elektron mikroskop tasvirlari a) ZnO va b) $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ yupqa qatlami uchun.

Tahlil va natijalar. 1-rasm ultra tovushli spray perioldizda Si taglikka o'stirilgan ZnO va $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ larni elektron mikroskopda olingan tasvirlarni ko'rsatadi. Bu tasvirlardan polokristal yupqa qatlam o'stirilganligini ko'rishingiz mumkin. Nanokristallar o'zaro juda yaqin joylashgan bo'lib ularning o'lchami taxminan 50 nm lar atrofida



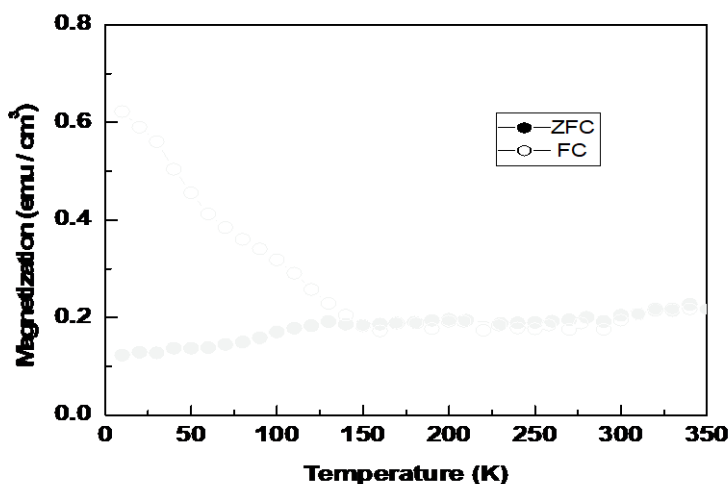
2-rasm. Rentgen spektrometrdagi olingan a) ZnO va b) $Zn_{0.97}Co_{0.03}O$ natijalari.

Rentgen spektrometrida olingan natijalarni 2-rasmda ko'rishingiz mumkin. Rasmlarda ko'rsatilgan natijalardan ikkichi faza ummuman yo'qligini kuzatishingiz mumkin. Ammo, ZnO bilan $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ lar natijalari solishtirilganda Co kiritilgan namunada asosiy o'q bo'yicha o'sish kamayganini kuzatishingiz mumkin. 3-rasm magnitlanishning temperaturaga bog'lanishini ko'rsatadi. Bunda namuna past a) $T=85\text{ K}$ va yuqori b) $T=300\text{ K}$ temperaturalarda namunaga parallel qo'yilgan magnit maydoni ostida o'lchangan. $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ namuna 85 K temperaturaldagi magnitlanishining tashqi maydonga bog'lanishidan namuna bu temperaturalda ferromagnit fazada ekanini kuzatish mumkin. Ammo, magnitlanishdan har bir Co^{+2} atomga to'g'ri keluvchi magnit moment $0.1\ \mu_B$ kutilayotgan $3\ \mu_B$ [10,11] dan ancha kichkina ekanini malum bo'ldi. Tashqi magnit maydoni oshirilsada magnitlanish to'yinishga erishmadi. Bunday hodisa superparamagnetiklarga xos hisoblanadi. 300 K temperaturaldagi magnitlanish esa chiziqli ko'rinishga ega va bu namuna xona temperaturasida paramagnetik ekanini ko'rsatadi.



3-rasm. $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ ning $M(B)$ bog'lanishi a) $T=85\text{ K}$ va b) $T=300\text{ K}$.

4-rasm $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ namunaning magnit maydoni bor va yo'q holatlar uchun magnitlanishning temperaturaga bog'lanishini ko'rsatadi. Bu grafik 130 K da katta temperaturalarda magnit qatlam paramagnetik fazaga o'tishini ko'rsatadi. Undan past haroratlarda ikki xil tashqi maydon bor va o'chirilgan holda olingan natijalarni solishtirishdan namunani superparamagnetik ekanini ko'rish mumkin. Bunday natijalar $\text{Zn}_{0.95}\text{Co}_{0.05}\text{O}$ alumini bilan qo'shimcha legirlanganda ham kuzatilgan va bu hodisa sirdagi kompensatsiyalanmagan Co nanoklasterlaridagi spinlar orqali tushuntirilgan [12].

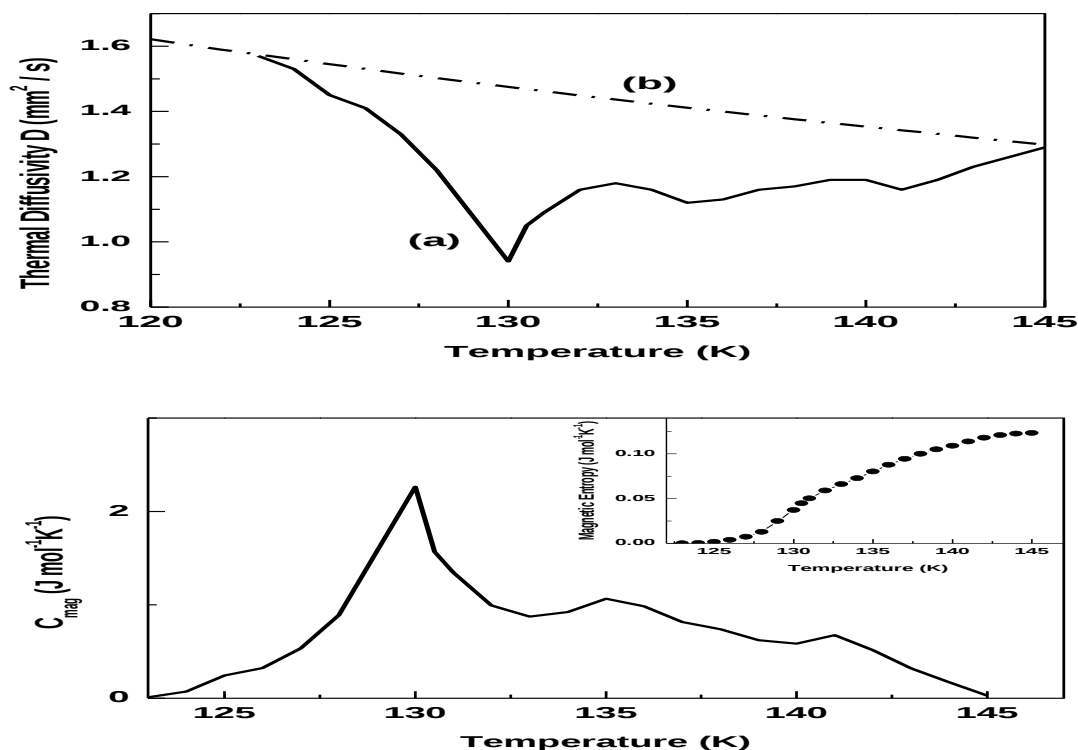


4-rasm. $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ namunaning tashqi magnitmaydoni bor va o'chirilgan hollarda magnit maydonining temperaturaga bog'lanishi.

Si taglikka o'stirilgan $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ va ZnO larning issiqlik diffuziyasining temperaturaga bog'lanishini 5-rasmda ko'rishingiz mumkin. Grafikdan ko'rinadiki 130 K da chuqur pasayish bo'lganini ko'rish mumkin. Bu issiqlik diffuzyasi minimumi xuddi 4-rasmdagi Co nanoklasterlaridagi faza o'tishidagi temperatura bilan mos tushushini ko'rishingiz mumkin. Demak, kuzatilyotgan bunday kichik ferromagnetizm Co nanoklasterlaridagi kompensatsiyalanmagan spinlar xisobiga paydo bo'lganini tushunish mumkin. CoO nanoklasterlari juda kichik o'lchamda bo'lganligi uchun rentgen spektrida ularni ko'rib

bo'lmaydi. 5-rasmda issiqlik diffuziyasining temperaturaga bog'lanishidagi 135 K va 141 K da kuzatilgan minimumlar Co^{+2} ioning uyg'ongan holatlariga mos kelgan [14].

Kirish qismida keltirilgan issiqlik diffuziyasi va issiqlik sig'imining teskari bog'lanishidan 6-rasmni olish mumkin. Rasmda ZnO uchun olingan fon natijasi olib tashlangan. Ushbu natijadan lokal magnit moment uchun tartiblanish entropiyasini hisoblash mumkin. Bog'lanish quyidagicha $\Delta S = C_m \frac{dT}{T}$ [15].



6-rasm. $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ namunaning issiqlik sig'imining temperaturaga bog'lanishi. Ichki grafikda faza o'tishidagi entropiyaning temperaturaviy o'zgarishi keltirilgan.

Hisoblash natijalari 6-rasmdagi ichki grafikda ko'rsatilgan. Entropiya natijalaridan $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ uchun topiladigan issiqlik sig'imi $0.12 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$ chiqdi. Bu esa kutilayotgan $0.35 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$ dan deyarli 3 marta kichik bo'lib chiqdi. Umumiy natijalar $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ dagi ferromagnetizmga juda kam Co ionlari qatnashyotganini xulosa qilish mumkin.

Xulosalar. $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ dagi kuchsiz ferromagnetizm magnitlanish va issiqlik diffuziyasining temperaturaga bog'lanishlari orqali o'rganildi. Issiqlik diffuziyasi 130 K da lamda shaklidagi minimumga erishishi ko'rsatildi va magnitlanishdagi superparamagnit klasterlarning faza o'tish temperaturasi bilan bir xil ekani ko'rsatildi. 135 K va 141 K larda issiqlik diffuziyasidagi minimumlar Co^{+2} ionidagi uyg'ongan spin holatlari hisobiga paydo bo'lishi aniqlandi. Bunday past kuriy temperaturasiga sabab $\text{Zn}_{0.97}\text{Co}_{0.03}\text{O}$ dagi juda kam sondagi ikkinchi faza CoO nano klasterlaridagi kompensatsiyalanmagan spinlar ekani ko'rsatildi.

ADABIYOTLAR

1. Dietl T., Ohno H., Matsukura F., Clibert J., and Ferrand D., Science 287, 1019 (2000).
2. Ueda K., Tabata H., and Kawai T., Appl. Phys. Lett. 79, 988 (2001).
3. Kittilstved K.R., Swartz D.A., Tuan A.C., Heald S.M., Chambers S.A., and Gamelin D.R., Phys. Rev. Lett. 97, 037203 (2006).
4. Kaspar T.C., Droubay T., Heald S.M., Engelhard M.H., Nachimuthu P., and Chambers S.A., Phys. Rev. B 77, 201303R (2008).
5. JCoey. M. D., Venkatesan M., and Fitzgerald C. B., Nature Mater. 4, 173 (2005).
6. Bouloudenine M., Viart N., Colis S., Kortus J., and Dinia A., Appl. Phys. Lett. 87, 052501 (2005).
7. Deka S., Pasricha R., and P. A. Joy, Phys. Rev. B 74, 033201 (2006).
8. Jeong S.Y., Kim S. J., Cho Y. C., Kim S. J., S. Lee, W. K. Kim, C. R. Cho, J. S. Bae, S. Park, and I. K. Jeong, J. Korean Phys. Soc. 56, 1347 (2010).
9. Belghazi Y., Schmerber G., Colis S., Rehspringer J. L., Berrada A., and Dinia A., Appl. Phys. Lett. 89, 122504 (2006).

10. Yuldashev Sh. U., Jeon H. C., Kang T. W., Nusretov R. A., Khvan I. V., and Pelenovich V. O., Korean J. Phys. Soc. 53, 192 (2008).
11. Marinelli M., Zammit U., Mercuri F., and Pizzoferrato R., Appl J.. Phys. 72, 1096 (1992).
12. Dietl T., Andrearczyk T., Lipinska A., Kiecana M., Tay M., and Wu Y., Phys. Rev. B 76, 155312 (2007).
13. Hanafin R., T. Archer, and S. Sanvito, Phys. Rev B 81, 054441 (2010).
14. Gopal E. S. R., Specific Heats at Low Temperatures (New York : Plenum, 1966).
15. Gu J. Y., Bader S. D., Zheng H., Mitchell J. F. and Gordon J. E., Phys. Rev. B 70, 054418 (2004).