Письма в ЖЭТФ, том 101, вып. 2, с. 136 – 142

Аномальный эффект Холла в разбавленном магнитном полупроводнике $In_{1-x}Mn_xSb$ с кластерами MnSb

Е. И. Яковлева[a,b] *Л. Н. Овешников* [c], *А. В. Кочура* [d], *К. Г. Лисунов* [e], *Э. Лахдеранта* [f 2)], *Б. А. Аронзон* [b,c]

[a]*Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия*

[b]*Физический институт им. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия*

[c]*Национальный исследовательский центр "Курчатовский институт", 123182 Москва, Россия*

[d]*Юго-Западный государственный университет, 305040 Курск, Россия*

[e]*Institute of Applied Physics ASM, MD-2028 Kishinev, Moldova*

[f]*Lappeenranta University of Technology, 53851 Lappeenranta, Finland*

Поступила в редакцию 5 декабря 2014 г.

В работе исследовались поликристаллы InSb:Mn с разным содержанием Mn. В образцах зафиксировано наличие двух ферромагнитных фаз: нанокластеров MnSb с $T_c \approx 600$ K и магнитной матрицы InMnSb с T_c ниже 10 K. Полученные магнитополевые зависимости холловского сопротивления демонстрируют нелинейное поведение в широком диапазоне температур. При высоких температурах это объясняется наличием двух типов носителей заряда – легких и тяжелых дырок. При температурах ниже температуры Кюри матрицы InMnSb наблюдается аномальный эффект Холла, дающий вклад в нелинейное поведение холловского сопротивления. Ферромагнитные кластеры MnSb не вносят вклада в аномальный эффект Холла. Их наличие не приводит к спиновой поляризации носителей заряда из-за окружающего эти кластеры барьера Шоттки, который препятствует их взаимодействию с носителями заряда. Предложен способ выделения аномальной холловской компоненты при наличии в холловском сопротивлении нелинейного вклада иной природы.

DOI: 10.7868/S0370274X15020125

В последние десятилетия особое внимание привлекают материалы, обладающие как полупроводниковыми, так и ферромагнитными свойствами, в связи из-за надежд, связанными с полупроводниковой спинтроникой. В качестве материалов для создания элементной базы спинтроники обычно рассматриваются разбавленные магнитные полупроводники (РМП) [1–3]. Однако в изучаемых РМП-системах преимущественно на основе однородных полупроводников типа $A^{III}B^{V}$ с добавлением Mn температура ферромагнитного упорядочения (температура Кюри) T_c оказывается ниже комнатной [4, 5], что существенно ограничивает возможности использования данных материалов в прикладных целях. Рекордное значение T_c для наиболее изученной РМП-системы $(Ga_xMn_{1-x})As$ составляет порядка 200 K [6]. Одним из возможных способов получения высокотемпературных ферромагнитных полупроводниковых материалов является введение в РМП дополнительных ферромагнитных нанокластеров с высокими значениями T_c, что может приводить к появлению в них магнитного момента и петли гистерезиса при температурах вплоть до комнатной [7–10]. Однако отметим, что наличие магнитного момента и даже его гистерезисное поведение не свидетельствуют о спиновой поляризации носителей заряда. Они могут наблюдаться в системе магнитных нанокластеров, не взаимодействующих ни друг с другом, ни с носителями заряда. Интерес представляет вещество, в котором введение ферромагнитных кластеров в РМП приводит к формированию крупномасштабного ферромагнитного состояния с взаимодействующими через спин-поляризованные носители заряда в матрице магнитными моментами ферромагнитных включений. В этом случае введение ферромагнитных кластеров в РМП приводит к повышению в нем температуры Кюри и усилению ферромагнитных свойств [10].

Разделить эти две ситуации можно с помощью аномального эффекта Холла (АЭХ), который является одним из основных методов исследования маг-

1) e-mail: elena.yakovleva@phystech.edu

2) E. Lahderanta

нитных свойств РМП-структур [11]. Суть данного эффекта заключается в появлении в полном холловском сигнале вклада, пропорционального не величине магнитного поля, а намагниченности. В РМП-материалах аномальный эффект Холла определяется спиновой поляризацией носителей заряда и тем самым является свидетельством ее наличия. В общем случае в магнитных материалах холловское сопротивление R_{xy} является суммой нормальной и аномальной компонент эффекта Холла:

$$R_{xy}d = \rho_{xy} = R_0\mathbf{B} + R_s\mathbf{M}, \quad (1)$$

где d – толщина слоя магнитного материала, R_0 – коэффициент нормального эффекта Холла, обусловленного силой Лоренца, R_s – коэффициент аномального эффекта Холла, определяемый спиновой поляризацией носителей заряда, $\mathbf{B}$ – магнитное поле, $\mathbf{M}$ – намагниченность. Настоящая работа посвящена исследованию аномального эффекта Холла в РМП-системах с включениями нанокластеров ферромагнетика и методам выделения аномальной компоненты холловского сопротивления.

В настоящей работе исследовалась серия из 3 образцов, представляющих собой поликристаллы InSb:Mn размером $5 \times 1 \times 0.1$ мм^3 с общим содержанием марганца 2, 3 и 6 % (образцы A1, A2 и A3 соответственно). Образцы были получены из расплава InSb и равных частей Mn и Sb с последующим быстрым охлаждением. Подробное описание технологии роста и приготовления образцов приведено в работе [12]. При такой методологии роста образцов часть атомов Mn занимает узлы элементов III группы в исходной полупроводниковой матрице, действуя как акцептор и образуя РМП $In_{1-x}Mn_xSb$, а часть кластеризуется, формируя гранулы MnSb. Таким образом, свободные дырки могут взаимодействовать как с локальными магнитными моментами единичных атомов Mn, случайно распределенных в матрице, так и с крупными кластерами MnSb.

Для уточнения структурных особенностей изучаемых систем было произведено их исследование при помощи порошковой рентгеновской дифрактометрии, атомно-силовой микроскопии (АСМ), сканирующей и просвечивающей электронной микроскопии и ядерного магнитного резонанса (ЯМР) [12]. В таблице представлены общее содержание и массовая доля атомов марганца в образцах $In_{1-x}Mn_xSb$, концентрация атомов замещения n_{Mn}, объемная и массовая доли фазы MnSb для всей серии образцов. Согласно результатам исследований большая часть атомов марганца формирует кластеры MnSb размером от 100 до 600 нм (рис. 1), каждый из которых по дан

Общее содержание и массовая доля атомов марганца в образцах $In_{1-x}Mn_xSb$, концентрация атомов замещения n_{Mn}, объемная и массовая доли фазы MnSb

Образец	x	Mn, % (масса)	n_{Mn}, 10^{19} см$^{-3}$	MnSb, % (масса)	MnSb, % (объем)
A1	0.02	0.5	6.6	1.2	1.0
A2	0.03	0.7	7.8	1.85	1.6
A3	0.06	1.4	9.2	4.1	3.5

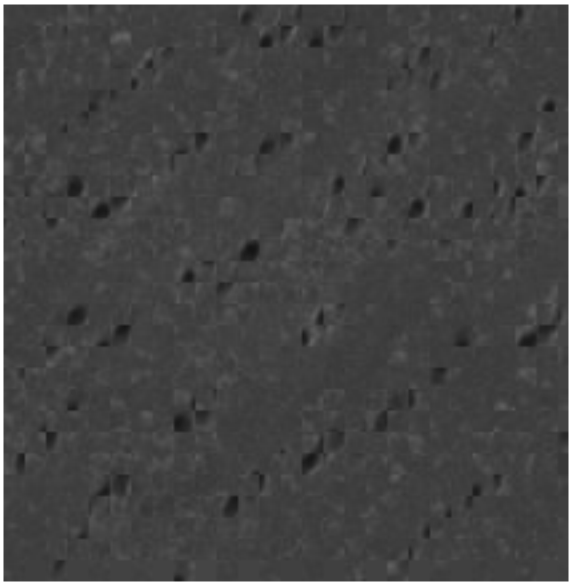

Рис. 1. Изображение области 5×5 мкм образца A3, полученное методом сканирующей электронной микроскопии. Темные области соответствуют кластерам MnSb

ным АСМ состоит из наногранул MnSb размером в среднем 24 нм. Распределение гранул по размерам, полученное методом АСМ, представлено на рис. 2.

Как видно из таблицы, образцы отличаются разным содержанием атомов Mn и пронумерованы в порядке возрастания этого параметра. Существенно, что увеличение содержания марганца пропорционально увеличивает массовую долю фазы MnSb, в то время как концентрация атомов замещения испытывает насыщение. Представленные в [12] исследования магнитных свойств аналогичных образцов показали, что они демонстрируют температуру Кюри $T_c \approx 600$ K, близкую к значению $T_c = 585$ K для объемного MnSb. Естественно предположить, что ферромагнетизм в исследуемых структурах при высоких температурах связан с существованием больших кластеров MnSb.

Теперь следует выяснить, определяется ли ферромагнитное поведение этого материала отдельны-

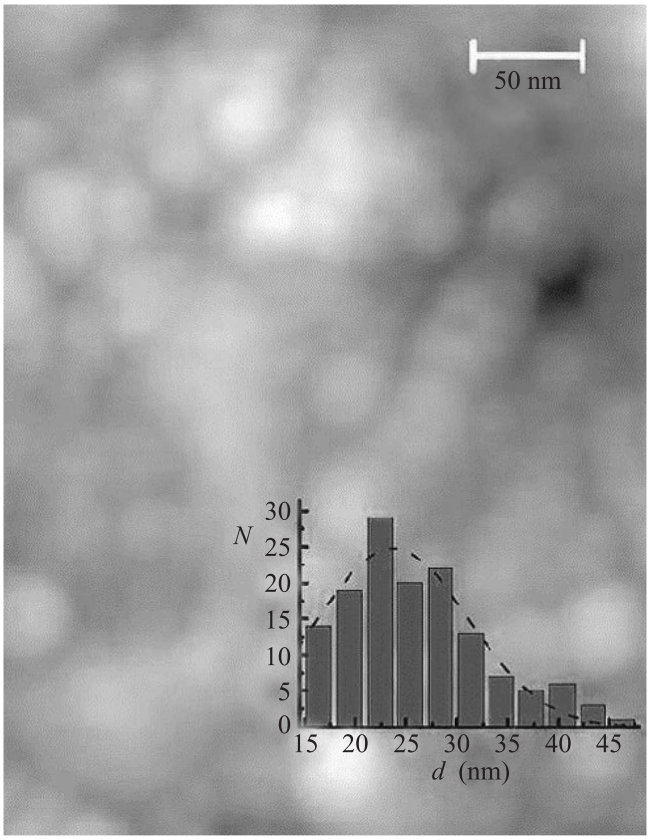

Рис. 2. Распределение гранул в кластере MnSb по размерам для образца А3

ми невзаимодействующими кластерами MnSb или в кристалле сформирована крупномасштабная ферромагнитная фаза, включающая в себя спиновую поляризацию носителей заряда в матрице. Этот вопрос представляет интерес, поскольку, как упоминалось ранее, для спинтронных применений значащим требуется наличие спиновой поляризации носителей заряда, что в общем случае не является следствием ферромагнитного упорядочения. Для ответа на него нами были проведены исследования магнитополевых и температурных зависимостей холловского и продольного сопротивлений указанных образцов. Напомним, что в РМП-системах аномальный вклад в холловское сопротивление является свидетельством спиновой поляризации носителей заряда [4, 13]. Определение этого вклада и составляет одну из целей настоящей работы.

Итак, в нашем случае имеются две возможные причины наличия магнитного момента и магнитного упорядочения в системе: магнитные кластеры и магнитные моменты атомов Mn, замещающих атомы In. Атомы замещения в любом случае взаимодействуют со свободными дырками, и температуру их ФМ-упорядочения можно определить по температурной зависимости продольного сопротивления [1, 4]. На рис. 3 приведены температурные зависимости про-

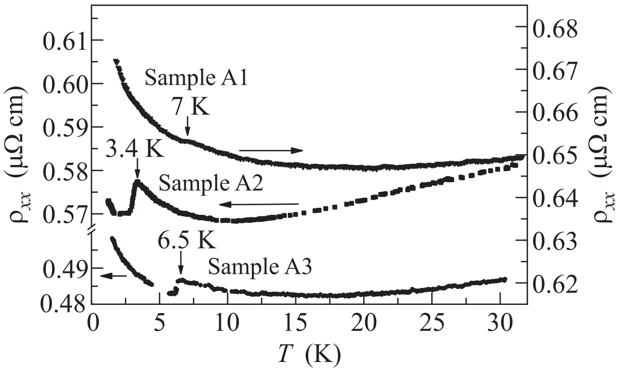

Рис. 3. Температурные зависимости продольного сопротивления для всех образцов

дольного сопротивления для всех образцов.

Как видно из рисунка, в области низких температур наблюдается пик, отвечающий ФМ-переходу в матрице InMnSb [1, 4]. Этот пик широко используется для определения температуры Кюри [14]. На рисунке соответствующие температуры отмечены стрелками. Также видно, что для образца А1 с наименьшим содержанием марганца данный пик крайне мал, что соответствует малой концентрации атомов замещения в матрице InSb.

Теперь обратимся к результатам измерения эффекта Холла с целью определения наличия спиновой поляризации носителей заряда при высоких температурах и тем самым наличия взаимодействия ферромагнитных кластеров со свободными дырками в матрице. На рис. 4 приведены магнитополевые зави-

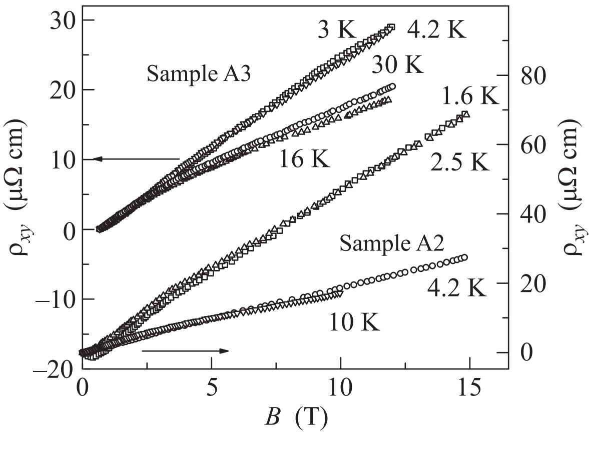

Рис. 4. Магнитополевые зависимости полного холловского сопротивления для образцов А2 и А3 при разных температурах

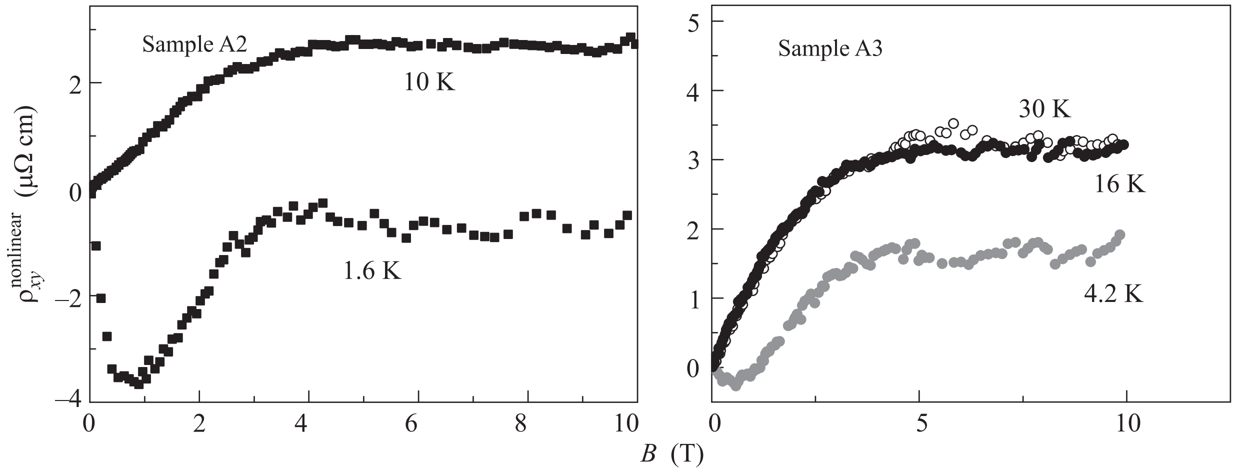

Рис. 5. Магнитополевая зависимость нелинейной части холловского сопротивления для образцов A2 и A3 при разных температурах

симости полного холловского сопротивления для образцов A2 и A3 при разных температурах. Стрелками указаны оси ординат, соответствующие каждому образцу. Видно, что полученные зависимости имеют нелинейный характер.

Стандартный способ выделения аномального вклада в эффект Холла заключается в вычитании из полного сигнала линейной по магнитному полю части. Данная процедура основывается на предположении о том, что нормальная компонента линейна по магнитному полю, в то время как аномальный вклад пропорционален намагниченности, которая насыщается в сильных магнитных полях. Результат выделения нелинейной части холловского сопротивления для образцов A2 и A3 представлен на рис. 5.

Видно, что полученные кривые имеют участок насыщения. Однако из результатов магнитометрических измерений [12] известно, что намагниченность исследуемых образцов насыщается в заметно меньших полях. В частности, поле насыщения для образца A3 составляет величину порядка 0.5 Тл, а согласно рис. 5 нелинейная компонента насыщается в полях 4–5 Тл. Такое различие свидетельствует о наличии нелинейного вклада, не связанного с аномальным эффектом Холла.

Отклонение магнитополевой зависимости нормальной компоненты холловского сопротивления от линейного поведения может быть вызвано несколькими причинами. В работе [15] рассмотрено влияние квантовых поправок к проводимости, вызванных слабой локализацией носителей заряда и их взаимодействием, на нелинейный характер магнитополевой зависимости холловского сопротивления вблизи нулевого поля. Однако в нашем случае существенной является нелинейность в больших полях, что не может быть объяснено в рамках упомянутой модели. Кроме того, указанная нелинейность проявляется и при высоких температурах вплоть до 300 К. Другой причиной нелинейности может служить наличие нескольких типов носителей заряда [16]. Такой вклад может быть значимым во всем рассматриваемом диапазоне полей. В случае двух типов носителей нелинейность вызвана тем, что в силу разности их подвижностей вклад в холловский сигнал от каждого из них по-разному меняется с ростом магнитного поля. В InSb p-типа основными носителями являются тяжелые дырки. В то же время на магнитополевых зависимостях продольного сопротивления, демонстрирующих осцилляции Шубникова–де Газа (рис. 6) наблюдается вклад легких дырок. На вставках к рис. 6 изображен период осцилляций в зависимости от номера максимума (максимумы осцилляций отмечены на основном рисунке вертикальными стрелками). Видно, что он монотонно изменяется. Это может быть связано с наличием второй группы дырок, т.е. второй частоты осцилляций. Такие частоты получаются равными $f_{SdH} = 52.6$, 73.5, 35 Тл для образцов A1, A2 и A3 соответственно. В рамках трехзонной модели Кейна были оценены концентрации дырок данного типа ($p^* \approx 2.95 \cdot 10^{18}$, $6.45 \cdot 10^{18}$ и $1.38 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$) и их эффективные массы ($m^*/m_0 \approx 0.030$, 0.032 и 0.027) для образцов A1, A2 и A3. Полученные эффективные массы близки к величине эффективной массы легких дырок $m_{lh} = 0.019 m_0$ вблизи потолка валентной зоны в InSb, увеличенной ввиду сильной непараболичности зоны легких дырок. Следовательно, осцилляции магнетосопротив-

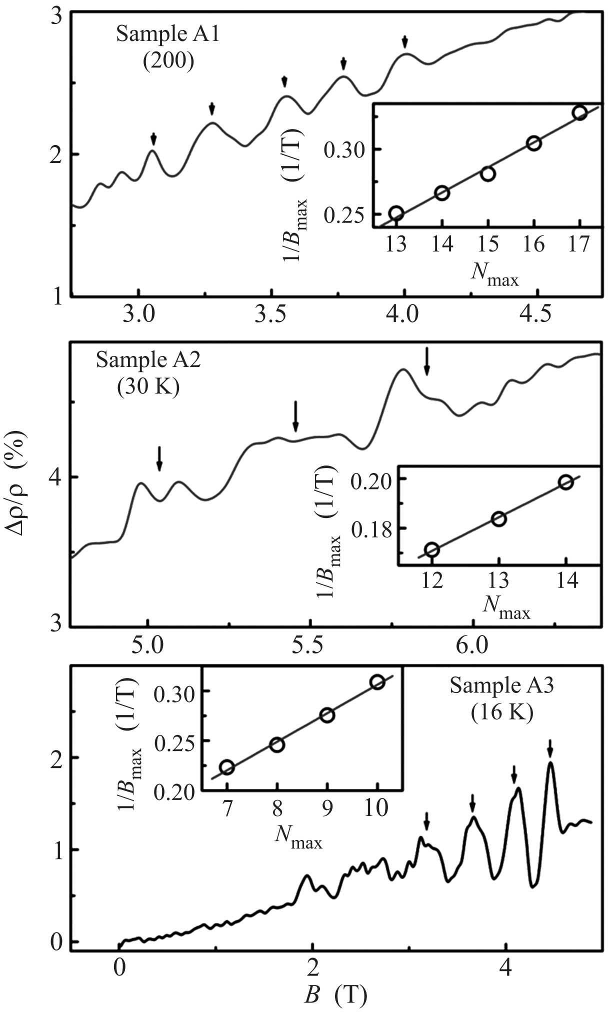

Рис. 6. Осцилляции магнетосопротивления для образцов A1, A2 и A3 при температурах, указанных в скобках. На вставке приведен период осцилляций в зависимости от номера максимума

ления отчасти связаны с вкладом легких дырок в InMnSb. Согласно расчетам концентрация тяжелых дырок в образцах составляет порядка 10^{20} см$^{-3}$ [8]. Таким образом, нелинейный ход нормальной компоненты холловского сопротивления связан с наличием легких и тяжелых дырок.

Различие в виде представленных на рис. 5 зависимостей нелинейной части холловского сопротивления от магнитного поля указывает на существование нескольких причин нелинейности. Это могут быть аномальный эффект Холла и нелинейное поведение нормальной компоненты холловского сопротивления. Также следует отметить, что аномальный эффект Холла при наличии двух магнитных фаз в общем случае будет иметь две компоненты. Отсутствие особенности вблизи поля насыщения намагниченности на магнитополевой зависимости нелинейной части при температурах выше T_c матрицы свидетельствует о том, что кластеры MnSb не дают вклада в АЭХ, т.е. не взаимодействуют со свободными дырками. При температурах ниже температуры Кюри матрицы InMnSb характер поведения кривых, приведенных на рис. 5, в слабых магнитных полях существенно меняется. Поскольку это происходит после установления в матрице ФМ-упорядочения, данное явление естественно связать со спиновой поляризацией носителей заряда и появлением АЭХ. Выше уже указывалось, что различие полей насыщения нелинейной компоненты эффекта Холла (4–5 Тл) и намагниченности (порядка 0.5 Тл) свидетельствует о наличии нелинейного вклада, не связанного с аномальным эффектом Холла. Из вышеприведенного рассмотрения следует, что последний, скорее всего, связан с наличием двух различных групп носителей заряда – легких и тяжелых дырок.

Для разделения различных вкладов в нелинейную компоненту холловского сопротивления был предложен метод выделения АЭХ в условиях нелинейного поведения нормального эффекта Холла. Так как ниже температуры Кюри матрицы InMnSb присутствуют два нелинейных вклада в холловское сопротивление, а выше – только один, появляющийся за счет наличия двух групп носителей заряда, если предположить, что этот вклад слабо зависит от температуры, то разница величин нелинейных вкладов до и после ФМ-перехода оказывается отвечающей аномальному эффекту Холла. Подобное предположение является справедливым ввиду того, что при низких температурах концентрация дырок почти не изменяется в пределах достаточно широкой полосы температур. Предложенный метод был реализован для образцов A2 и A3. Полученные результаты приведены на рис. 7.

Как видно из рисунка, полученный аномальный вклад является отрицательным. Подобное поведение аномального эффекта Холла находится в хорошем согласии с результатами, полученными в работе [17] в кристаллах InMnSb с содержанием Mn 0.02 % при отсутствии ферромагнитных включений. Важно отметить, что насыщение аномальной компоненты холловского сопротивления происходит в полях, заметно меньших поля насыщения нелинейной компоненты полного холловского сопротивления. Полученные значения поля насыщения АЭХ согласуются с магнитометрическими данными, что свидетельствует о справедливости данного метода.

В заключение обсудим, почему ферромагнитные кластеры не дают вклада в аномальный эффект Хол-

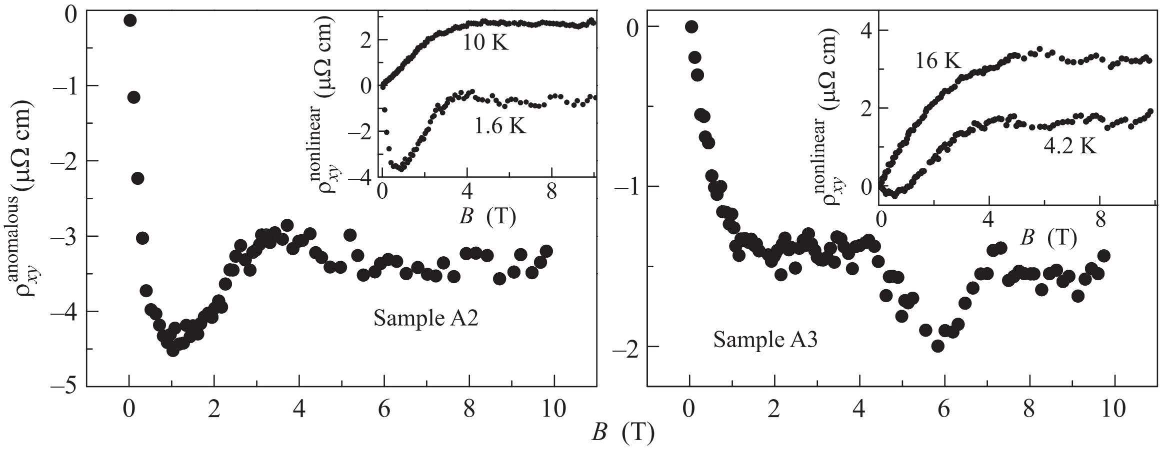

Рис. 7. Магнитополевые зависимости аномального холловского сопротивления для образцов A2 и A3 при температурах 1.6 и 4.2 K соответственно. На вставках показаны полевые зависимости нелинейной компоненты полного холловского сопротивления при температурах выше и ниже соответствующих T_c матрицы InMnSb

ла и, соответственно, не приводят к спиновой поляризации носителей заряда. В работе [10] было показано, что возникающие на границах аналогичных нанокластеров в матрице GaMnSb барьеры Шоттки препятствуют взаимодействию свободных носителей заряда с магнитными моментами ферромагнитных кластеров. При увеличении концентрации свободных носителей заряда ширина барьеров Шоттки уменьшается. При этом их прозрачность увеличивается за счет уменьшения высоты барьера относительно уровня Ферми, сдвигающегося при повышении концентрации носителей заряда. При определенном соотношении ширины барьера и глубины проникновения носители заряда могут взаимодействовать с магнитными моментами в кластере, находясь в барьере, тем самым приобретая спиновую поляризацию. Такое взаимодействие становится существенным, когда глубина проникновения волновой функции дырок под барьером сравнивается с шириной барьера Шоттки. В соответствии с оценками [10] для матрицы GaMnSb этому отвечает концентрация дырок $p \approx 10^{20}\,\text{см}^{-3}$. Однако в случае кластеров MnSb в матрице InMnSb за счет большей эффективной массы тяжелых дырок, являющихся основным типом носителей заряда в рассматриваемой системе, для начала взаимодействия потребуется заметно большая концентрация. Таким образом, в исследуемых системах нанокластеры и наногранулы MnSb оказываются невзаимодействующими с носителями заряда, а значит, им соответствует нулевой вклад в АЭХ. Таким образом, получается. Следовательно нелинейность холловского сопротивления при температурах выше температуры Кюри матрицы InMnSb связана с наличием легких и тяжелых дырок.

Предложенная методика выделения АЭХ является относительно простым способом определения наличия взаимодействия между магнитной фазой и свободными носителями заряда. Другим результатом работы служит подтверждение представления о том, что взаимодействие носителей заряда с высокотемпературными ферромагнитными нановключениями и повышение температуры Кюри за счет этого взаимодействия ограничены наличием барьеров Шоттки и возможны лишь при концентрации носителей заряда в матрице, заметно превышающий $10^{20}\,\text{см}^{-3}$.

Исследования структуры образцов и тестовые измерения в слабых магнитных полях выполнены при поддержке контракта Министерства образования и науки РФ №14.613.21.0019, а исследования транспортных свойств в сильных магнитных полях при низких температурах – при поддержке гранта РНФ # 14.12.00879 на оборудовании ЦКП ФИАН.

1. T. Dietl, *Lecture Notes on Semiconductor Spintronics*, Springer Berlin (2007).
2. *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, ed. by D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth, Springer, Series, Nano Science and Technology (2002).
3. M. Tanaka, S. Ohya, and P. Nam Hai, Appl. Phys. Rev. **1**, 011102 (2014).
4. T. Jungwirth, J. Sinova, J. Mašek, J. Kucera, and A. H. MacDonald, Rev. Mod. Phys. **78**, 809 (2006).
5. T. Jungwirth, K. Y. Wang, J. Masek, K. W. Edmonds, J. Konig, J. Sinova, M. Polini, N. A. Goncharuk, A. H. MacDonald, M. Sawicki, A. W. Rushforth, R. P. Campion, L. X. Zhao, C. T. Foxon, and B. L. Gallagher, Phys. Rev. B **72**, 165204 (2005).

6. L. Chen, X. Yang, F. Yang, J. Zhao, J. Misuraca, P. Xiong, and S. von Molnar, Nano Lett. **11**, 2584 (2011).
7. B. A. Aronzon, V. V. Rylkov, S. N. Nikolaev, V. V. Tugushev, S. Caprara, V. V. Podolskii, V. P. Lesnikov, A. Lashkul, R. Laiho, R. R. Gareev, N. S. Perov, and A. S. Semisalova, Phys. Rev. B **84**, 075209 (2011).
8. E. Lahderanta, A. V. Lashkul, A. V. Kochura, K. G. Lisunov, B. A. Aronzon, and M. A. Shakhov, Phys. Stat. Sol. A **211**(5), 991 (2014).
9. S. F. Marenkin, O. A. Novodvorsky, A. V. Shorokhova, A. B. Davydov, B. A. Aronzon, A. V. Kochura, I. V. Fedorchenko, O. D. Khramova, and A. V. Timofeev, Inorganic Mat. **50**, 897 (2014).
10. В. В. Рыльков, Б. А. Аронзон, Ю. А. Данилов, Ю. Н. Дроздов, В. П. Лесников, К. И. Маслаков, В. В. Подольский, ЖЭТФ **127**(4), 838 (2005).
11. N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A. H. MacDonald, and N. P. Ong, Rev. Mod. Phys. **82**, 1539 (2010).
12. A. V. Kochura, B. A. Aronzon, K. G. Lisunov, A. V. Lashkul, A. A. Sidorenko, R. De Renzi, S. F. Marenkin, M. Alam, A. P. Kuzmenko, and E. Länderamta, J. Appl. Phys. **113**, 083905 (2013).
13. T. Dietl and H. Ohno, Rev. Mod. Phys. **86**, 187 (2014).
14. M. Wang, R. A. Marshall, K. W. Edmonds, A. W. Rushforth, R. P. Campion, and B. L. Gallagher, App. Phys. Lett. **104**, 132406 (2014).
15. G. M. Minkov, A. V. Germanenko, O. E. Rut, A. A. Sherstobitov, and B. N. Zvonkov, Phys. Rev. B **82**, 035306 (2010).
16. В. Л. Бонч-Бруевич, С. Г. Калашников, *Физика полупроводников*, Наука, М. (1977).
17. G. Mihaly, M. Csontos, S. Bordacs, I. Kezsmarki, T. Wojtowicz, X. Liu, B. Janko, and J. K. Furdyna, Rhys. Rev. Lett. **100**, 107201 (2008).