

ОСОБЕННОСТИ ЭФФЕКТА ХОЛЛА В СЛОЯХ GaMnSb, ПОЛУЧЕННЫХ ОСАЖДЕНИЕМ ИЗ ЛАЗЕРНОЙ ПЛАЗМЫ

В. В. Рыльков^{*а}, *Б. А. Аронзон*^{**а}, *Ю. А. Данилов*^{б,с}, *Ю. Н. Дроздов*^с,
В. П. Лесников^б, *К. И. Маслаков*^а, *В. В. Подольский*^б

^а *Российский научный центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия*

^б *Научно-исследовательский физико-технический институт
Нижегородского государственного университета им. Н. И. Лобачевского
603950, Нижний Новгород, Россия*

^с *Институт физики микроструктур Российской академии наук
603950, Нижний Новгород, Россия*

Поступила в редакцию 23 сентября 2004 г.

Методом осаждения из лазерной плазмы в вакууме получены эпитаксиальные пленки GaMnSb, содержание Mn в которых достигает примерно 10 ат.%. Температура роста T_s при нанесении пленок варьировалась в диапазоне 440–200 °С, что приводило к изменению концентрации дырок соответственно от $3 \cdot 10^{19}$ до $5 \cdot 10^{20}$ см⁻³. Структурные исследования показали, что слои GaMnSb помимо ионов Mn, замещающих Ga, содержат ферромагнитные содержащие Mn кластеры и контролируемые величиной T_s мелкие акцепторные дефекты типа Ga_{5b}. В отличие от ранее изученных однофазных GaMnSb-систем (знак аномального эффекта Холла отрицательный, а температура Кюри не превышает 30 К), в полученных пленках обнаружен аномальный эффект Холла положительного знака, гистерезисный характер которого проявлялся при температурах вплоть до комнатной, причем тем сильнее, чем выше концентрация дырок. Необычное поведение этого эффекта интерпретируется с позиции взаимодействия носителей заряда с ферромагнитными кластерами, которое в значительной мере определяется наличием барьеров Шоттки на их границе с полупроводниковой матрицей и усиливается с возрастанием концентрации дырок. Показано также, что обсуждавшееся в литературе отсутствие данного эффекта в полупроводниковых соединениях на основе элементов III–V групп с ферромагнитными кластерами MnSb или MnAs связано, вероятнее всего, с низкими значениями концентрации дырок в полученных объектах.

PACS: 72.25.Dc, 75.47.-m, 72.20.Mu

1. ВВЕДЕНИЕ

Разбавленные магнитные полупроводники (РМП), содержащие магнитные примеси в больших концентрациях, представляют собой неупорядоченную среду и поэтому их свойства в значительной мере определяются беспорядком (см. обзор [1]). Неупорядоченным средам при наличии только кулоновского взаимодействия посвящено огромное число работ, в то же время в условиях совместного действия магнитного и кулоновского взаимодей-

ствий такие среды практически не изучались, хотя интерес к подобным исследованиям весьма велик [1]. К числу интенсивно развиваемых и исследуемых РМП относятся твердые растворы марганца в полупроводниковых соединениях элементов III и V групп (в частности, GaMnAs и GaMnSb) [2, 3]. Это связано с тем, что такие полупроводники имеют сравнительно высокие температуры Кюри и могут быть реализованы в виде гетероэпитаксиальных композиций на подложках монокристаллических материалов типа GaAs, что открывает перспективы интеграции их с традиционно используемыми в полупроводниковой микро- и оптоэлектронике при-

*E-mail: rylkov@imp.kiae.ru

**E-mail: aronzon@imp.kiae.ru

борами [3, 4]. В данных материалах Mn является акцепторной примесью, т.е. введение Mn в полупроводник приводит к появлению как локальных магнитных моментов, так и свободных дырок, что может вызвать ферромагнетизм, стимулированный носителями [5]¹⁾. Установлено [5], однако, что для достижения высоких температур Кюри T_C в этих материалах ($T_C \geq 77$ К) необходимо введение атомов марганца в полупроводниковую матрицу в концентрациях 10^{20} – 10^{21} см⁻³, что существенно превышает предел его равновесной растворимости. Успехи по получению пересыщенных твердых растворов Mn в полупроводниках III и V групп достигнуты на пути использования неравновесных методов их выращивания, основным из которых является низкотемпературная (температура процесса равна примерно 250 °С) молекулярно-лучевая эпитаксия (НТМЛЭ) [3, 4]. На примере слоев Ga_{1-x}Mn_xAs было показано [3], что существует оптимальное содержание марганца x (0.05–0.06), при котором формируются однофазные монокристаллические пленки со структурой цинковой обманки, причем атомы Mn замещают Ga в узлах, выступая в качестве акцепторов. При этом достигается температура Кюри около 110 К при концентрации дырок $p = 3.5 \cdot 10^{20}$ см⁻³ [3]. Недавно при использовании специальной технологии уменьшения концентрации донорных дефектов было достигнуто значение $T_C = 159$ К [6], близкое к возможному теоретическому пределу [7]. В аналогичных слоях однофазных твердых растворов Mn в GaSb, где атомы Mn также занимают преимущественно узлы галлия и являются акцепторами, достигнутые температуры Кюри не превышают 30 К [8]. В случае полученных таким же методом так называемых дискретных сплавов GaSb/Mn (периодических структур) величина T_C составляла 80 К [9]. Высокие значения температуры Кюри могут быть, в принципе, достигнуты в дискретных сплавах на основе сильно пересыщенных растворов Mn в полупроводниковых соединениях элементов III и V групп (III–Mn–V) (см., например, [9]). В то же время при большем содержании x и/или повышении температуры роста наблюдаются эффекты распада твердого раствора и образования дополнительной магнитной фазы, природа которой сейчас активно обсуждается [9, 10]. Наиболее часто в качестве

дополнительной фазы выступают ферромагнитные кластеры MnAs или MnSb со структурой NiAs ($T_C = 318, 587$ К [11], соответственно) или цинковой обманки [9].

Ключевая роль в исследованиях магнитных свойств РМП на основе соединений III–Mn–V отводится выявлению и изучению особенностей поведения аномального эффекта Холла (АЭХ), который, как известно, в случае ферромагнитных металлов пропорционален намагниченности M и связан с влиянием спин-орбитального взаимодействия на рассеяние спин-поляризованных электронов [12]. Недавно выполненные расчеты [13] показывают, что АЭХ в полупроводниках III–Mn–V может быть обусловлен поправками к скорости носителей, связанными с так называемой фазой Берри. В этом случае АЭХ также определяется обменным расщеплением спиновых подзон дырок, пропорциональным намагниченности, и, следовательно, как и в ферромагнитных металлах, холловское сопротивление R_H подчиняется соотношению [3]

$$R_H = \frac{R_0}{d} B + \frac{R_s}{d} M, \quad (1)$$

где d — толщина слоя РМП, R_0 — константа нормального эффекта Холла, обусловленного силой Лоренца, пропорциональной магнитной индукции B , а R_s — константа АЭХ.

Важная роль АЭХ при исследованиях ферромагнетизма РМП связана с тем, что этот эффект является наиболее прямым методом изучения взаимодействия носителей тока с магнитной подсистемой. Кроме того, в случае тонких пленок, когда велико влияние диамагнетизма подложек, АЭХ более эффективно может быть использован для изучения в них магнитного упорядочения, чем исследования намагниченности [3, 14, 15]. Другая, более существенная причина использования АЭХ связана со сложным характером магнитной фазы, которая может возникать в материалах III–Mn–V [9, 10]. Так, например, в работе [16] для кристаллов Ga_{1-x}Mn_xSb, выращенных методом Бриджмена ($x = 0.03$ – 0.14), на основании изучения температурной зависимости намагниченности сообщалось о проявлении ферромагнетизма с температурой Кюри $T_C \approx 540$ К, т.е. близкой к $T_C = 587$ К для MnSb-кластеров. В этой связи уместно отметить, что представленные в работе [16] магнитополевые зависимости эффекта Холла (практически линейные) и намагниченности существенно отличаются друг от друга. Кроме того, не было замечено проявления в АЭХ ферромагнит-

¹⁾ Прямой обмен между ионами Mn в данных системах носит антиферромагнитный характер. Поэтому введение компенсирующих доноров приводит в них к полному подавлению ферромагнетизма [3].

ных кластеров типа MnSb или MnAs в случаях соответственно GaMnSb [8] и GaMnAs [3], хотя вклад кластеров в намагниченность был существенным и наблюдался вплоть до комнатных температур. Вместе с тем «температуры Кюри», найденные в этих системах по АЭХ (T_C^*), были заметно меньше комнатной температуры ($T_C^* < 10$ К в случае GaMnSb с кластерами MnSb [8]). Соответственно принято считать, что в случае многофазных растворов Mn в III-V-соединениях полученный из измерений АЭХ параметр T_C^* характеризует магнитное упорядочение лишь части магнитной подсистемы, которая, однако, в основном определяет спиновую поляризацию носителей и наиболее важна для приложений РМП в спинтронике. Поэтому не случайно, что в последних работах [6, 8, 14] предпочтение для фиксации поляризованных по спину носителей и определения магнитного состояния системы при разных температурах в материалах III-Mn-V отдается исследованиям АЭХ. Эти измерения в случае однофазных растворов дают ту же величину T_C , что и исследования намагниченности [3, 6].

Несмотря на важность исследований АЭХ в материалах III-Mn-V, вопрос о его природе остается открытым. Так, недавно было показано [17], что величина АЭХ в GaMnAs хорошо согласуется с расчетами [13], при этом знак его (положительный) совпадает со знаком нормального эффекта Холла в соответствии с работой [13]. Однако в случае системы GaMnSb знак АЭХ оказывается отрицательным, т. е. противоположным знаку нормального эффекта Холла [4, 8, 9]. В принципе, теория [13] предсказывает изменение знака АЭХ, однако для этого необходимо, чтобы энергия Ферми приближалась к потолку зоны Γ_7 , отщепленной за счет спин-орбитального взаимодействия [18] (в случае GaSb величина $\Delta_0 = 0.75$ эВ [19]), что не реализуется в экспериментах [8, 9]²⁾. Остается открытым вопрос и об отсутствии влияния на АЭХ в данных системах ферромагнитных кластеров типа MnSb (MnAs), хотя в случае разбавленных ферромагнитных гранулированных сплавов (наночастиц ферромагнитных металлов в немагнитной металлической матрице) АЭХ наблюдается достаточно хорошо, существенно превосходя по величине компоненту нормального эффекта Холла [20]. Поскольку в однофазных РМП температуры Кюри достаточно низ-

ки, а в случае разбавленных ферромагнитных гранулированных сплавов они могут существенно превышать комнатную температуру, представляет интерес исследование пересыщенных твердых растворов Mn в полупроводниках III-V групп, в частности, и их гальваномагнитных свойств.

Цель данной работы заключалась в исследовании особенностей поведения эффекта Холла в пересыщенных марганцем слоях GaMnSb, полученных путем осаждения нелегированного GaSb и металлического Mn из лазерной плазмы в вакууме (ОЛП). Оказалось, что в пленках, полученных с помощью ОЛП, образуются в основном дефекты проводимости p -типа. Более того, концентрацией акцепторных дефектов и, соответственно, концентрацией дырок p можно было легко управлять с помощью изменения температуры подложки, варьируя p в диапазоне от 10^{19} до $5 \cdot 10^{20}$ см⁻³. В отличие от ранее известных результатов, в данных слоях был обнаружен «высокотемпературный» АЭХ положительного знака, проявляющий гистерезисный характер вплоть до комнатных температур. Обработка данных АЭХ с использованием процедуры, предложенной Беловым и Арроттом [21], позволила определить параметр T_C^* , характеризующий проявление спонтанного (в отсутствие магнитного поля) сигнала АЭХ. Этот параметр достигал 330 К при $p = 5 \cdot 10^{20}$ см⁻³ и уменьшался с уменьшением концентрации дырок. Физические причины обнаруженных особенностей АЭХ и отсутствие этого эффекта в ранее исследованных сходных структурах обсуждаются в настоящей работе.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Для нанесения пленок GaMnSb применялся импульсный лазер на алюмо-иттриевом гранате, работающий в режиме модулированной добротности на длине волны 1.06 мкм. Использована вращающаяся комбинированная мишень, состоящая из пластины монокристаллического нелегированного GaSb, частично закрытой металлическим Mn высокой чистоты. След испарения лазером материалов представляет собой окружность, поэтому соотношение длин дуг распыляемых GaSb и Mn определяло уровень легирования выращиваемого слоя. Нанесение пленок осуществлялось на пластины полуизолирующего GaAs с ориентацией (100) при варьировании температуры подложки T_s в диапазоне 200–440 °С. Толщины полученных пленок составляли 40–140 нм.

Структурные особенности и состав пленок бы-

²⁾ В работе [18] показано, что расчеты [13] эквивалентны рассмотрению АЭХ в рамках так называемой модели боковых прыжков, в которой знак АЭХ должен совпадать со знаком носителей. В другой модели (асимметричного рассеяния) знак АЭХ может быть, в принципе, произвольным [18].

ли исследованы методами рентгенодифракционного анализа с помощью прибора ДРОН-4 по двухкристальной схеме с монохроматором Ge(400) на излучении $K_{\alpha 1}$ в Cu; рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) на установке MicroLab МК II фирмы VG Scientific с использованием немонхроматизованного излучения K_{α} в Al и электронно-зондового микроанализа на установке САМЕВАХ. Намагниченность пленок измерялась с использованием вибрационного магнитометра ВНВ-50 с чувствительностью не хуже 10^{-5} Гс · см³.

Образцы для исследования эффекта Холла были выполнены с использованием фотолитографии в виде мезоструктур в стандартной форме двойного креста (ширина проводящего канала $W = 0.5$ мм, длина $L = 4.5$ мм). Измерения эффекта Холла в полях до 1 Тл проводились с помощью автоматизированной установки с использованием метода цифровой фильтрации и накопления сигнала. Напряжение между холловскими (V_y) и потенциальными (V_x) зондами и протекающий через образец ток I_x синхронно регистрировались в режиме постоянного напряжения при положительных и отрицательных значениях магнитного поля B , направленного перпендикулярно поверхности пленки (вдоль оси z). По результатам измерений находились сопротивление образца между потенциальными зондами $R_{xx} = V_x/I_x$ и поперечное сопротивление $R_{xy} = V_y/I_x$. Предварительные эксперименты показали, что поперечное сопротивление может иметь гистерезисный характер, а зависимость продольного сопротивления от магнитного поля пренебрежимо мала (величина магнитосопротивления в исследуемых пленках не превышала 0.1%). Поэтому в условиях возможного гистерезиса холловское сопротивление R_H определялось путем вычитания из R_{xy} четной составляющей сигнала (обусловленной сопротивлением асимметрии в расположении холловских зондов): $R_H = R_{xy} - (R_{xy}^+ + R_{xy}^-)/2$, где R_{xy}^+ и R_{xy}^- — значения поперечного сопротивления, отвечающие положительному и отрицательному направлениям магнитного поля, полученные, например, при сканировании по полю в сторону его уменьшения по абсолютной величине (от 1 до 0 Тл).

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Рентгенодифракционные спектры $\theta/2\theta$ -сканирования для структур GaSb/GaAs, нанесенных при температуре подложки 440 °С, показаны на рис. 1. В спектрах структуры со слоем GaSb без легиро-

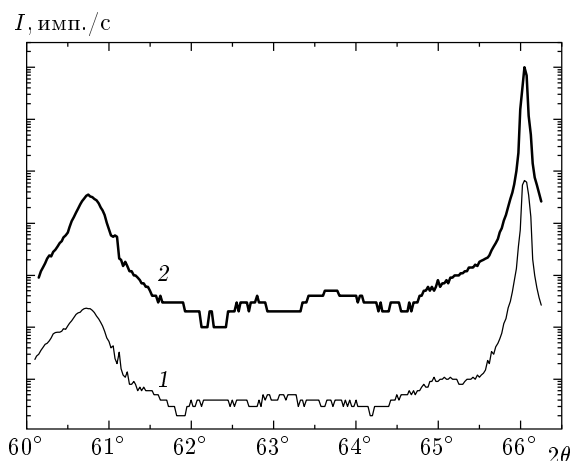


Рис. 1. Спектры рентгеновской дифракции структур GaSb/GaAs, сформированных нанесением при $T_s = 440$ °С: 1 — нелегированная; 2 — легированная марганцем. Для ясности спектры разнесены по оси интенсивности путем умножения на 100 исходного спектра структуры 2

вания Mn (кривая 1) имеются пики подложки при $2\theta = 66.05^\circ$ (отражение GaAs(400)) и слоя при 60.74° (отражение GaSb(400)). Брэгговские углы 2θ -пику от слоя и подложки уточнялись в 2 этапа. На первом этапе уточнялся угол поворота кристалла с широкой щелью перед детектором (ω -сканирование), на втором, с узкой щелью, — угол поворота детектора при фиксированном на максимуме интенсивности угле поворота образца (θ -сканирование). Используя подложку в качестве эталона, вводили поправку для измеренного угла 2θ слоя.

Расчет параметра решетки нелегированного GaSb по этому значению 2θ дает величину $a_0 = 0.6096$ нм, что совпадает с величиной, известной из литературы [19]. Интегральной характеристикой структурного совершенства слоя служила ширина кривой качания (FWHM), измеренная согласно методике [22] по спектру ω -сканирования. Величина FWHM для пика от слоя GaSb составляет $\Delta\omega \approx 0.4^\circ$. Следовательно, GaSb представляет собой мозаичную монокристаллическую пленку, хотя достаточно большая величина $\Delta\omega$ может свидетельствовать о неидеальности кристаллической структуры пленки, связанной, по-видимому, с различием значений постоянной решетки GaSb и GaAs (более 7%).

Рентгенодифракционный $\theta/2\theta$ -спектр для структуры со слоем GaMnSb, нанесенным при той же температуре 440 °С, демонстрируется кривой 2 на

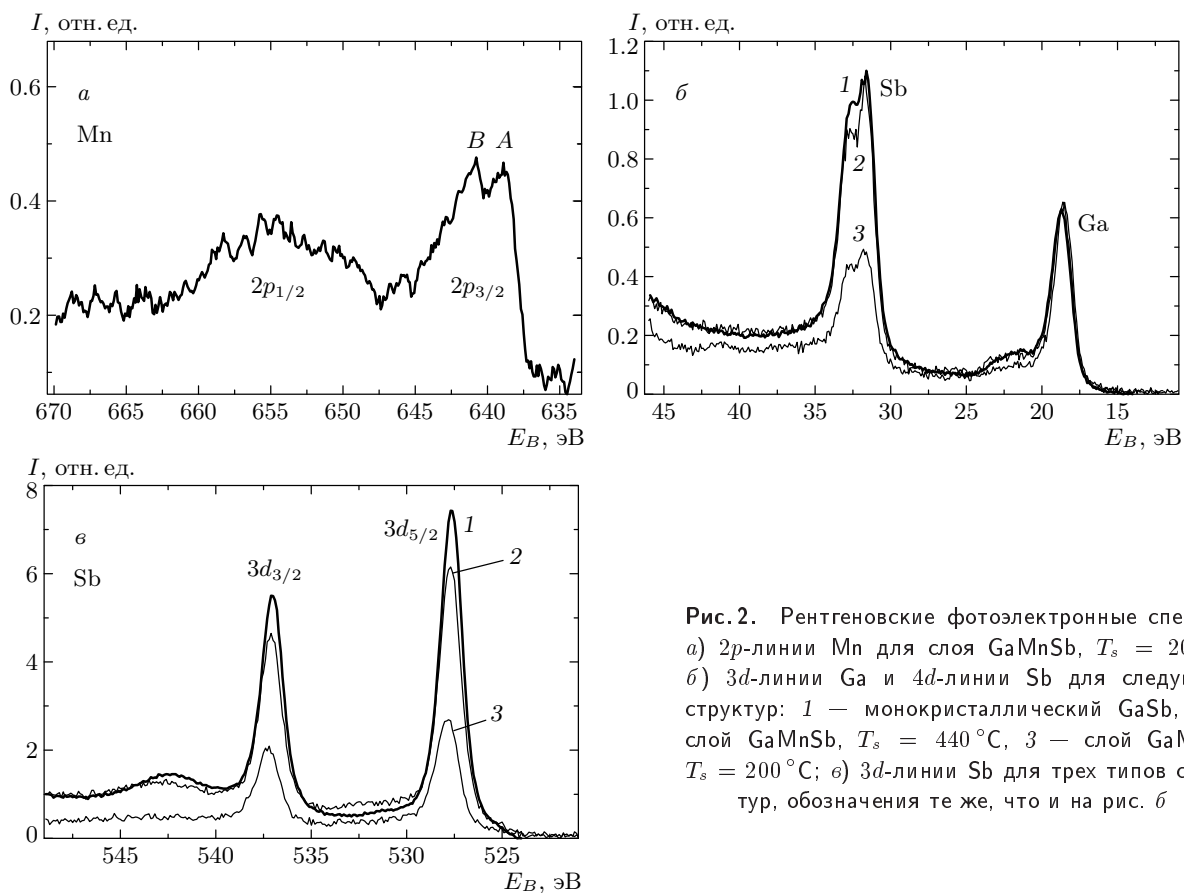


Рис. 2. Рентгеновские фотоэлектронные спектры: а) 2*p*-линии Mn для слоя GaMnSb, $T_s = 200^\circ\text{C}$; б) 3*d*-линии Ga и 4*d*-линии Sb для следующих структур: 1 — монокристаллический GaSb, 2 — слой GaMnSb, $T_s = 440^\circ\text{C}$, 3 — слой GaMnSb, $T_s = 200^\circ\text{C}$; в) 3*d*-линии Sb для трех типов структур, обозначения те же, что и на рис. б

рис. 1. Данный спектр подобен спектру GaSb в отсутствие Mn (кривая 1). Это означает, что введение Mn методом ОЛП не приводит к заметному структурному несовершенству получаемых слоев. Однако в случае GaMnSb процедура уточнения брэгговского угла 2θ -пика GaSb(400) с использованием ω - и θ -сканирований дает несколько большее его значение ($2\theta = 60.76^\circ$) по сравнению с нелегированным слоем. Используя формулу $a(x) = a_0 - 0.00528x$ (a_0 — постоянная решетки нелегированного GaSb) для параметра решетки $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Sb}$ со структурой цинковой обманки [23] и найденное значение угла $2\theta = 60.76^\circ$ для слоев GaMnSb, выращенных при $T_s = 350\text{--}440^\circ\text{C}$, получаем оценку содержания Mn, равную $x \approx 0.04 \pm 0.01$.

При уменьшении температуры роста слоя GaMnSb наблюдается монотонное увеличение значений FWHM от 0.4° при $T_s = 440^\circ\text{C}$ до 0.5° при $T_s = 300^\circ\text{C}$. Пик GaSb(400), хотя и меньшей интенсивности, наблюдается вплоть до $T_s = 200^\circ\text{C}$. Это свидетельствует о том, что присутствие марганца указанной концентрации в слое антимида галлия

не влияет существенно на характер его роста при ОЛП в интервале температур $200\text{--}440^\circ\text{C}$.

Исследование состава пленок методом электронно-зондового микроанализа с пространственным разрешением порядка 1 мкм показывает, что Mn в полученных слоях распределен по площади образца достаточно однородно (в пределах разброса примерно 1% по величине x). Толщины исследуемых пленок гораздо меньше области возбуждения рентгеновского излучения ускоренными электронами в структуре, что не позволяет на основе данных этого метода провести точный расчет содержания марганца. Оценки же показывают, что содержание Mn в пленках GaSb составляет величину $x \approx 0.10$, т. е. большую, чем следует из рентгенодифракционного анализа. Данное расхождение может быть связано с тем, что метод электронно-зондового микроанализа регистрирует химический состав пленки, а дифракция рентгеновских лучей чувствительна к изменению параметра решетки GaSb в результате вхождения атомов Mn в узлы галлиевой подрешетки. При использовании неравновесного метода

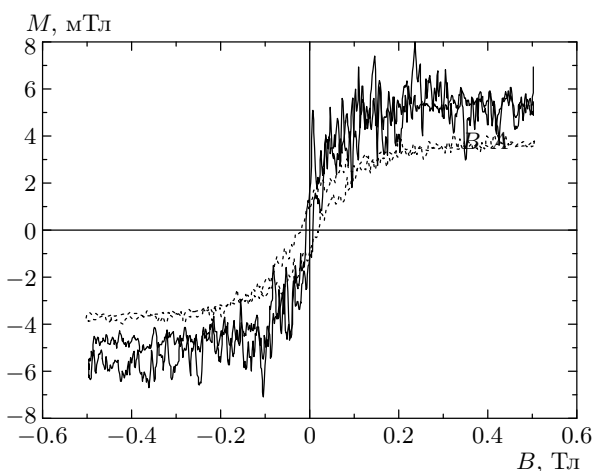


Рис. 3. Зависимости намагниченности от приложенного магнитного поля для слоев GaMnSb толщиной $d = 40$ нм, $T_s = 200$ °С (сплошная линия) и $d = 140$ нм, $T_s = 440$ °С (точки)

нанесения слоев атомы марганца могут входить в другие решеточные положения (например, в междоузлия) и образовывать кластеры. Соответственно, значение $x \approx 0.10$ оказывается более реальным.

Предположение о возможном наличии кластеров подтверждается данными рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС). На рис. 2 показаны спектры РФЭС, полученные для структур GaMnSb/GaAs. Спектр РФЭС для $2p$ -линии Mn приведен на рис. 2а. Этот спектр имеет сложную структуру, в которой отчетливо просматриваются, по крайней мере, два химических состояния атомов марганца. Положения $2p_{3/2}$ -пигов Mn для этих двух состояний обозначены на рисунке как А и В. Действительное положение пиков для соединений определяется рядом факторов, в частности, изменением энергетических уровней вследствие химического (так называемый химический сдвиг [24]), а в магнитных материалах и обменного [25] взаимодействий. Экспериментальные (рис. 2а) значения E_B для $2p_{3/2}$ -линии Mn для состояний А и В равны соответственно 638.9 эВ и 640.8 эВ, первое из которых совпадает с E_B для металлического Mn: 638.9 эВ [26]. Аналогичная ситуация с расщеплением $p_{3/2}$ -пигов Mn наблюдалась и в работе [25] для тройных сплавов, содержащих Mn и Sb. Первый пик в этой работе совпадает по своему положению с пиком для металлического марганца. Второй пик, расположенный при больших значениях E_B и отщепленный в случае, близком к нашему, приблизительно на 2 эВ, появляется в соединениях, и его возникнове-

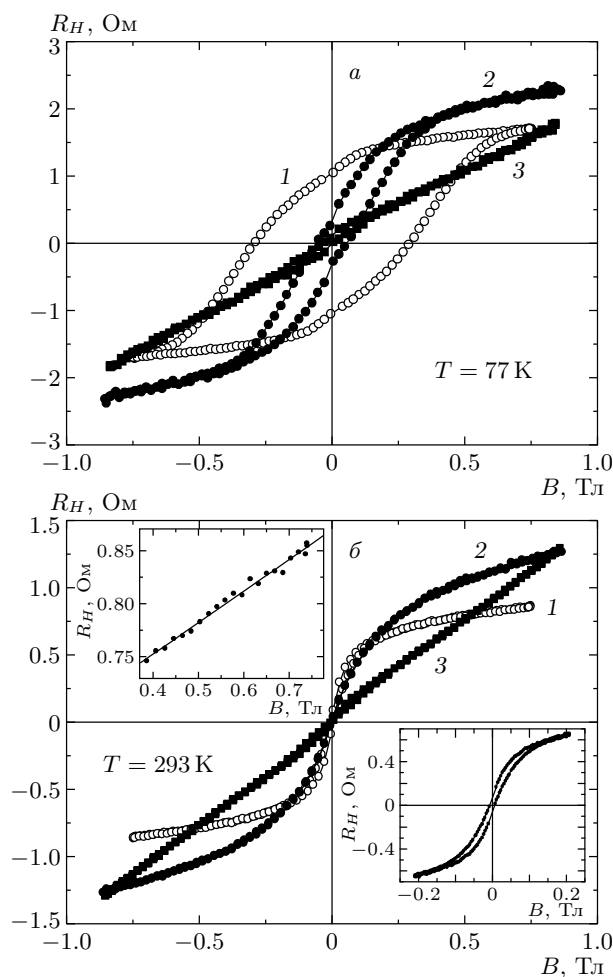


Рис. 4. Зависимости холловского сопротивления от приложенного магнитного поля для трех образцов структур GaMnSb/GaAs: 1 — $p = 5 \cdot 10^{20}$ см⁻³, $T_s = 200$ °С, $d = 40$ нм; 2 — $p = 1.5 \cdot 10^{20}$ см⁻³, $T_s = 200$ °С, $d = 70$ нм; 3 — $p = 3 \cdot 10^{19}$ см⁻³, $T_s = 440$ °С, $d = 140$ нм. Номера кривых соответствуют номерам образцов. Температура измерений: а — 77 К; б — 293 К. На вставке в верхней части рис. б показана зависимость $R_H(B)$ образца 1 для значений $B > 0.4$ Тл, а на вставке в нижней части рис. б — для -0.2 Тл $< B < 0.2$ Тл

ние, вероятно, связано с обменным взаимодействием, обусловленным химическим состоянием атомов марганца, при котором они имеют большой локальный магнитный момент [25]. Следовательно, можно говорить, по крайней мере, о двух состояниях атомов Mn в пленке GaMnSb: первое характерно для связей атомов Mn с атомами Sb, а второе аналогично металлическому (связи Mn–Mn). Можно заключить, что исследуемые пленки представляют собой пересыщенный твердый раствор Mn в GaSb, содер-

жащий матрицу GaSb, в которой около 4% атомов Ga замещены марганцем, и содержащие марганец кластеры, влияние которых на магнитные и гальваномагнитные свойства структур обсуждается ниже.

Другая особенность полученных пленок GaMnSb заключается в том, что они изначально даже в отсутствие легирования, в том числе без добавления Mn, имели p -тип проводимости. Связано это, по-видимому, с формированием в процессе выращивания пленок антиструктурных дефектов Ga_{Sb} (атомов Ga, расположенных на месте атомов Sb), которые являются в Ga_{Sb} мелкими акцепторами [19]. Действительно, как видно из данных рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии, приведенных на рис. 2б (3d-линии Ga и 4d-линии Sb) и рис. 2в (две 3d-линии Sb) для слоев GaMnSb (спектры 2 и 3) в сравнении с соответствующими спектрами РФЭС для монокристаллического нелегированного GaSb (кривые 1), содержание атомов Ga в исследуемых пленках превышает содержание атомов Sb ($C_{Ga}/C_{Sb} > 1$). Нестехиометрия нанесенных слоев (величина отношения C_{Ga}/C_{Sb}) увеличивается с уменьшением температуры нанесения T_s . При этом, согласно измерениям, выполненным при 300 К, их удельное сопротивление ρ уменьшается от $\rho = 4 \cdot 10^{-2}$ Ом·см ($T_s = 440^\circ\text{C}$) до $\rho = 3 \cdot 10^{-3}$ Ом·см ($T_s = 200^\circ\text{C}$), свидетельствуя о росте концентрации дырок.

Результаты измерений намагниченности при комнатной температуре для пленок GaMnSb, полученных при разных температурах роста, приведены на рис. 3. Видно, что, несмотря на существенные различия в проводимости слоев (концентрации дырок), нанесенных при разных T_s , пленки демонстрируют ферромагнитное поведение, причем с несильно различающимися значениями намагниченности насыщения: $M_s = 5.3$ мТл ($T_s = 200^\circ\text{C}$) и $M_s = 3.6$ мТл ($T_s = 440^\circ\text{C}$). В предположении, что магнитный момент определяется ионами марганца Mn^{2+} [3] (фактор $g = 2$, а полный спин $S = 5/2$), расчет дает их концентрацию $N_{Mn} = 1.1 \cdot 10^{21}$ см⁻³ ($T_s = 200^\circ\text{C}$) и $N_{Mn} = 7.8 \cdot 10^{20}$ см⁻³ ($T_s = 440^\circ\text{C}$), что согласуется с максимальной оценкой концентрации атомов Mn, выступающего в качестве примеси замещения Ga: $N_{Mn} = 7.1 \cdot 10^{20}$ – $1.8 \cdot 10^{21}$ см⁻³ при $x = 0.04$ – 0.10 . Заметим, однако, что в условиях, когда магнитные свойства полупроводников III–Mn–V слабо зависят от концентрации дырок, их обычно связывают с наличием ферромагнитных кластеров типа MnSb или MnAs [3, 8].

В отличие от намагниченности, поведение эффекта Холла сильно зависело от концентрации ды-

рок (температуры нанесения T_s). На рис. 4 представлены магнитополевые зависимости холловского сопротивления $R_H(B)$, полученные при $T = 77$ К (рис. 4а) и $T = 293$ К (рис. 4б), для образцов 1–3 с концентрацией дырок соответственно $p = 5 \cdot 10^{20}$ см⁻³ (кривая 1), $p = 1.5 \cdot 10^{20}$ см⁻³ (кривая 2) и $p = 3 \cdot 10^{19}$ см⁻³ (кривая 3). Концентрации носителей определялись по наклону зависимости $R_H(B)$ в полях $B > 0.4$ – 0.5 Тл. Линейный характер этой зависимости для образца 1 в данном диапазоне полей демонстрируется на верхней вставке рис. 4б. В целом, из рис. 4 следует, что в образцах 1 и 2 эффект Холла носит существенно аномальный характер в диапазоне $T = 77$ – 300 К, тогда как в образце 3 с наименьшей концентрацией дырок ($T_s = 440^\circ\text{C}$) эффект Холла является нормальным. Действительно, холловское сопротивление в данном образце линейно изменяется с B в диапазоне полей 0– 0.9 Тл, хотя намагниченность испытывает насыщение уже при $B > 0.2$ Тл (рис. 3). Из сопоставления представленных на рис. 4 данных для образцов 1 и 2 видно, что гистерезисный характер поведения АЭХ также подавляется с уменьшением концентрации дырок. Так, для образца 1 ($p = 5 \cdot 10^{20}$ см⁻³) коэрцитивное поле достигает $B_c = 0.29$ Тл при $T = 77$ К, причем гистерезис в АЭХ проявляется вплоть до комнатных температур ($B_c = 6.5$ мТл, см. нижнюю вставку на рис. 4б). В то же время для образца 2 ($p = 1.5 \cdot 10^{20}$ см⁻³) $B_c = 0.058$ Тл при $T = 77$ К, а при $T = 300$ К гистерезис в АЭХ не наблюдается.

С учетом того, что в условиях доминирования АЭХ холловское сопротивление пропорционально намагниченности M (см. уравнение (1)), в работах [3, 15] для определения спонтанного холловского сопротивления R_H^s , пропорционального спонтанной намагниченности M_s и характеризующего ферромагнитное упорядочение системы, предложено использовать процедуру, развитую Беловым и Арротом [21] (построение зависимости M^2 от B/M). В нашем случае для нахождения R_H^s необходимо, согласно [21], построить зависимость R_H^2 от B/R_H и экстраполировать ее линейную часть до пересечения с осью ординат.

Примеры зависимостей R_H^2 от B/R_H для образца 1 при нескольких значениях температуры измерений приведены на рис. 5. При температурах 267 К и 293 К линейная экстраполяция R_H^2 к $B = 0$ дает величину $(R_H^s)^2 > 0$, в то время как при $T = 335$ К линейная экстраполяция приводит к отрицательному значению $(R_H^s)^2$, что означает отсутствие ферромагнитного упорядочения при данной температуре.

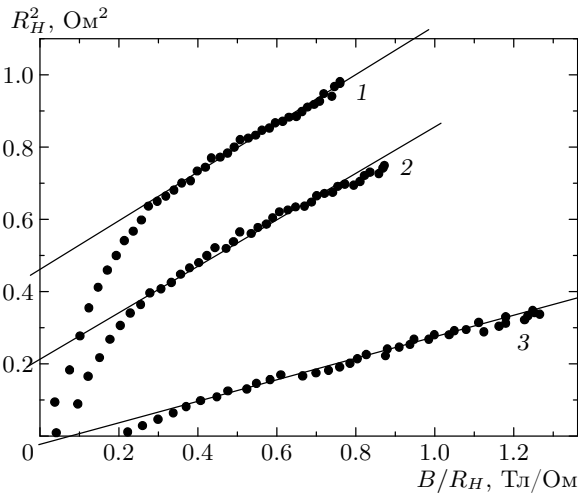


Рис. 5. Зависимость величины R_H^2 от B/R_H для образца 1 ($p = 5 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$). Температура измерений: 1 — 267 К; 2 — 293 К; 3 — 335 К

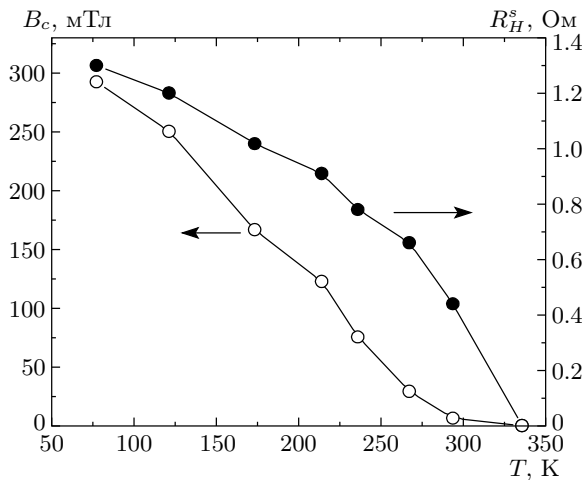


Рис. 6. Зависимость коэрцитивной силы намагниченности B_c (левая кривая) и спонтанной составляющей холловского сопротивления R_H^S (правая кривая) от температуры измерений для образца 1

Температурные зависимости спонтанного холловского сопротивления R_H^S , полученные с использованием метода [21], и коэрцитивного поля B_c показаны для образца 1 на рис. 6. Приведенные результаты свидетельствуют о том, что спонтанное сопротивление АЭХ в данном образце проявляется вплоть до температуры $T_C^* \approx 330 \text{ К}$.

В случае однофазных III–Mn–V-материалов параметр T_C^* совпадает с температурой Кюри T_C [3, 6]. При этом возможно определение данной величины из анализа поведения АЭХ в парамагнитной

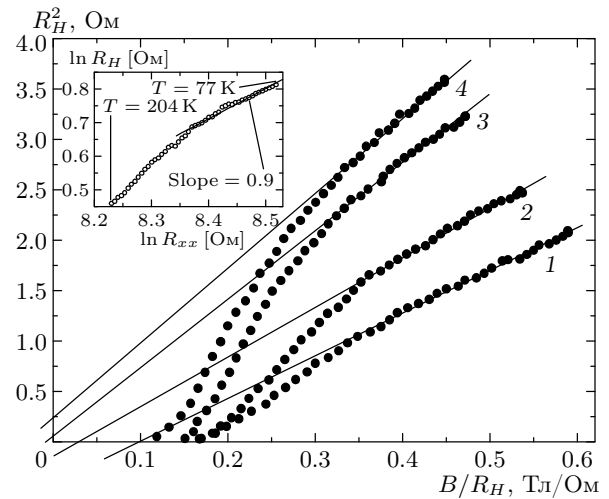


Рис. 7. Зависимость R_H^2 от B/R_H для образца 2 ($p = 1.5 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$) для разных температур измерения: 1 — 254 К, 2 — 226 К, 3 — 180 К, 4 — 160 К; на вставке показано соотношение между R_H и R_{xx} в двойном логарифмическом масштабе

области температур [3, 14]. Действительно, в условиях, например, когда АЭХ определяется механизмом асимметричного рассеяния носителей, константа АЭХ $R_s = cR_{xx}$ [12], где c — коэффициент, не зависящий от температуры. Поэтому для отношения холловского сопротивления R_H к продольному R_{xx} , получим согласно (1): $R_H/R_{xx} \approx cM/d$. Отсюда следует, что в парамагнитной области магнитная восприимчивость

$$\chi \propto [d(R_H/R_{xx})/dB]_{B=0},$$

и для определения T_C можно воспользоваться законом Кюри–Вейса: $(1/\chi) \propto (T - T_C)$. В работе [3] на примере GaMnAs показано, что этот подход дает ту же величину T_C , что и анализ АЭХ в ферромагнитной области.

На рис. 7 показаны арроттовские зависимости для образца 2 ($p = 1.5 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$) в области температур $T \geq 160 \text{ К}$. Пересечение при линейной экстраполяции этих зависимостей с началом координат достигается при $T \approx 180 \text{ К}$, т. е., исходя из аналогии с однофазными РМП, следовало бы ожидать, что температура Кюри для данного образца $T_C \approx 180 \text{ К}$ и, начиная с этой температуры, образец оказывается парамагнитным. На вставке рис. 7 показана в двойном логарифмическом масштабе зависимость холловского сопротивления от продольного, полученная при $B = 0.75 \text{ Тл}$. Сопротивление R_{xx} в данном образце растет с понижением температуры.

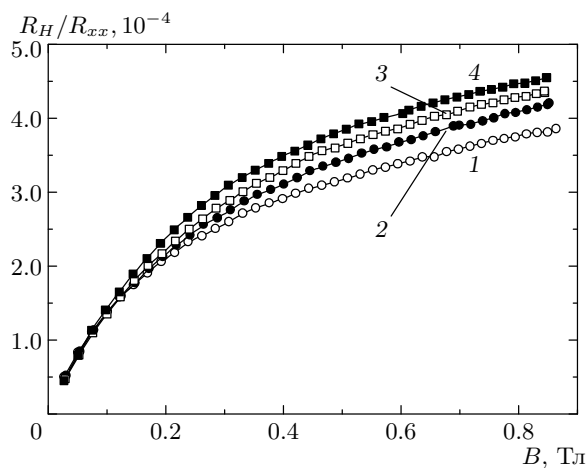


Рис. 8. Зависимость отношения R_H/R_{xx} от приложенного магнитного поля для образца 2 при различных температурах измерения: 1 — 293 К, 2 — 254 К, 3 — 226 К, 4 — 180 К

Из вставки на рис. 7 следует, что наклон зависимости $\ln R_H$ от $\ln R_{xx}$ в области низких температур, где намагниченность должна слабо зависеть от T , близок к единице, т. е. предположение о доминирующей роли в АЭХ механизма асимметричного рассеяния носителей в нашем случае оправдано. В этой ситуации казалось бы, что наклон зависимости R_H/R_{xx} от B в слабых полях, пропорциональный χ , должен расти с понижением температуры. В действительности же этот наклон практически не зависит от температуры (см. рис. 8), в отличие от однофазных РМП типа GaMnAs [3] (см. данные рис. 3 из [3]).

Более существенные различия обнаруживаются при сопоставлении описанных выше особенностей АЭХ с поведением этого эффекта в слоях GaMnSb, полученных методом МЛЭ при различных температурах выращивания [8]. В работе [8] было установлено, что Mn в слоях, выращенных при высоких температурах $T_s = 560^\circ\text{C}$, практически целиком находится в ферромагнитных MnSb-кластерах. При этом концентрация дырок в GaSb-матрице составила $2.4 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ (для образца с суммарным содержанием Mn $x = 0.013$), а в эффекте Холла доминировала нормальная составляющая вплоть до $T \approx 10 \text{ К}$. В нашем же случае эффект Холла является нормальным только в образце 3 с близкой концентрацией дырок ($p = 3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$), существенно более низкой, чем в образцах 1 и 2. Между тем полученные в работе [8] слои при $T_s = 250^\circ\text{C}$ имели структуру цинковой обманки, в которой атомы Mn в основном замещают Ga и выступают в качестве

акцепторов. При этом в области низких температур измерений наблюдался ярко выраженный АЭХ с отрицательным знаком (противоположным нормальному эффекту Холла). С использованием процедуры Белова–Арротта в [8] было найдено $T_C^* \approx 25 \text{ К}$ при концентрации дырок $p = 1.3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ (для образца с содержанием Mn $x = 0.016$). Напротив, в нашем случае в образце 2 с приблизительно той же концентрацией ($p = 1.5 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$) $T_C^* \approx 180 \text{ К}$ и знак АЭХ положительный.

Переходя к обсуждению представленных выше экспериментальных данных, отметим, что, как и в исследованных нами образцах, знак АЭХ в сплошных пленках MnSb положительный [27]. Разумно предположить, что знак АЭХ сохраняется при переходе от сплошной пленки к разрывной, поскольку недавно нами на примере наночастиц Fe в SiO₂-матрице (знак АЭХ в Fe также положительный) было установлено, что знак АЭХ при переходе через перколяционный порог к туннельному режиму проводимости не изменяется [28]. Неизменность знака АЭХ следует и из модели эффективной среды [29]. Отметим также, что при использованных нами температурах роста $T_s = 200\text{--}440^\circ\text{C}$ пленки содержат ферромагнитную фазу, причем с приблизительно одинаковой концентрацией (см. данные по намагниченности рис. 3).

Изложенные выше факты наводят на естественную мысль, что обнаруженный в исследованных образцах GaMnSb АЭХ связан с присутствием в них кластеров типа MnSb, причем в пересчете на MnSb ($M_s = 71 \text{ мТл}$ [6]) объемное содержание ферромагнитной фазы составляет примерно 0.07, т. е. заведомо меньше критической величины (примерно 0.6 [28]), отвечающей перколяционному переходу металл–изолятор. Кардинальное же отличие наших объектов (проявляющееся в доминировании АЭХ при достаточно высоких температурах) от образцов с MnSb-кластерами [8] заключается в существенно большей концентрации дырок в GaSb-матрице, что связано с генерацией дефектов акцепторного типа (антиструктурных дефектов Ga_{Sb}) в процессе выращивания пленок методом ОЛП. С этим утверждением согласуется и экспериментально обнаруженная сильная зависимость поведения АЭХ от концентрации носителей при постоянной концентрации ферромагнитной фазы (см. рис. 4). В этой связи естественно предположить, что в полупроводниках с магнитными включениями взаимодействие носителей с ферромагнитными кластерами в значительной мере определяется наличием барьеров Шоттки на их границе с полупроводниковой матрицей (в на-

шем случае, на границе MnSb/GaSb). Соответственно, это взаимодействие зависит не только от содержания ферромагнитной фазы, но и от концентрации дырок, увеличение которой приводит к уменьшению ширины барьеров Шоттки. Оценки показывают, что при концентрации ионизованных акцепторов $N_A^- \approx p = 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ожидаемая ширина барьеров Шоттки должна составлять примерно 2 нм. При оценке мы полагали, что высота барьеров Шоттки φ определяется положением максимума плотности поверхностных состояний в запрещенной зоне GaSb, который в большинстве ковалентных полупроводников расположен от края валентной зоны на $(1/3)$ от величины ширины запрещенной зоны E_g [30] (для GaSb величина $E_g = 0.7 \text{ эВ}$ [19]). Между тем в этих условиях эффективная глубина l_ψ убывания волновой функции тяжелых дырок ($m_{hh} = 0.23m_0$) под барьером составляет по оценке 1.3–2.5 нм, т. е. может оказаться даже больше ширины барьеров Шоттки при $p = 10^{20} \text{ см}^{-3}$ и $\varphi = (1/3)E_g$. При этом естественно ожидать сильного туннельного обмена между носителями матрицы и ферромагнитными кластерами³⁾. (Оценки l_ψ получены с использованием выражения для прозрачности треугольного барьера [30]; нижняя оценка l_ψ соответствует среднему электрическому полю области пространственного заряда слоя Шоттки, а верхняя — максимальному полю.)

Температура, при которой отсутствует гистерезис в АЭХ, в случае ферромагнитных гранулированных сплавов интерпретируется как температура блокирования [20], при которой происходит переход к суперпарамагнитному пределу. Оценки показывают, что кластеры MnSb размером $a_c \approx 10 \text{ нм}$ обеспечивают температуры блокирования порядка 200–300 К, проявляющиеся в наших экспериментах как температуры Кюри (при оценках мы учли только энергию магнитной анизотропии, связанную с формой кластеров [31]). Заметим также, что разброс кластеров по форме и размерам существенно ослабляет температурную зависимость намагниченности [32], с чем может быть связано отсутствие влияния температуры на парамагнитное поведение АЭХ в слабых полях (слабая зависимость $\chi(T) \propto [d(R_H/R_{xx})/dB]_{B=0}$, наблюдаемое в образце 2 (рис. 8).

³⁾ Заметим, что среднее расстояние между ионизованными акцепторами при $p = 10^{20} \text{ см}^{-3}$ также оказывается около 2 нм. С учетом этого обстоятельства приведенные оценки фактически означают отсутствие барьеров Шоттки. При этом происхождение АЭХ аналогично тому, что наблюдается в магнитных гранулированных сплавах [20].

Вместе с тем необходимо отметить, что интерпретация данных по АЭХ с позиции изолированных (не взаимодействующих) MnSb-кластеров в терминах температуры блокирования сталкивается с очевидными трудностями. Действительно, увеличение температуры роста T_s , сопровождаемое уменьшением концентрации дырок, должно приводить к укрупнению кластеров. Высокие значения коэрцитивных сил, наблюдаемые в эксперименте, свидетельствуют об однодоменности кластеров, а в этом случае коэрцитивное поле тем выше, чем больше их размеры [33]. Поэтому с ростом T_s гистерезисный характер поведения АЭХ должен при этом усиливаться, что не наблюдается в эксперименте, хотя в силу уменьшения концентрации носителей тока вклад нормальной компоненты в эффект Холла возрастает. Следовательно, можно предположить, что размеры MnSb-кластеров (и, соответственно, расстояние между ними) заметно меньше 10 нм, и допустить, что они являются взаимодействующими, причем это взаимодействие инициируется носителями в парамагнитной GaSb:Mn-матрице, что приводит к эффективному «укрупнению» кластеров и одновременно к увеличению спиновой поляризации дырок, определяющей АЭХ.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, с использованием метода осаждения из лазерной плазмы в вакууме получены эпитаксиальные пленки пересыщенного твердого раствора Mn в GaSb. Особенность выращенных слоев заключается как в наличии растворенных атомов Mn, так и ферромагнитных содержащих Mn включений, а также контролируемых температурой роста дефектов акцепторного типа. Последние в значительной степени определяют концентрацию дырок в GaSb-матрице, которая растет с уменьшением температуры роста и при $T_s = 200^\circ\text{C}$ достигает $5 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$. В отличие от однофазных GaMnSb-систем в полученных пленках обнаружен аномальный эффект Холла (АЭХ) положительного знака, гистерезисный характер которого сильно зависит от концентрации дырок и проявлялся до температур вплоть до комнатной.

Мы считаем, что особенности поведения АЭХ в нашем случае связаны со взаимодействием носителей заряда с ферромагнитными кластерами, которое в значительной мере определяется наличием барьеров Шоттки на их границе раздела с полупроводниковой матрицей. Роль этих барьеров понижает

ся с возрастанием концентрации дырок. Можно считать, что обсуждавшееся в литературе загадочное отсутствие аномального эффекта Холла в РМП с ферромагнитными включениями (кластерами MnSb или MnAs, обладающими высокими температурами Кюри), связано, вероятнее всего, с наличием барьеров Шоттки на границах раздела кластеров с полупроводниковой матрицей. Указанные барьеры Шоттки при малых концентрациях носителей (порядка 10^{19} см⁻³) являются достаточно широкими и препятствуют взаимодействию носителей с материалом ферромагнитных кластеров.

Выяснение природы ферромагнитных включений в полученных объектах и механизма их взаимодействия через полупроводниковую матрицу, содержащую в значительных концентрациях свободные носители и магнитные ионы, требует, однако, дальнейших исследований. Последние безусловно представляют фундаментальный интерес, особенно в свете недавно обнаруженного дальнедействующего характера обменного взаимодействия тонких ферромагнитных слоев через полупроводниковую прослойку [34].

Авторы благодарны Е. З. Мейлихову и В. А. Иванову за обсуждение результатов и А. Б. Грановскому за ценные замечания.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 04-02-16158, 03-02-17029 и 02-02-16974), а также в рамках Программы РАН «Спин-зависимые явления в твердых телах и спинтроники».

ЛИТЕРАТУРА

1. C. Timm, J. Phys.: Condens. Matter **15**, R1865 (2003).
2. H. Ohno, Science **291**, 840 (2001).
3. H. Ohno and F. Matsukura, Sol. St. Comm. **117**, 179 (2001).
4. X. Chen, M. Na, M. Cheon et al., Appl. Phys. Lett. **81**, 511 (2002).
5. T. Dietl, H. Ohno, and F. Matsukura, Phys. Rev. B **63**, 195205 (2001).
6. K.W. Edmonds, P. Boguslavski, K. Y. Wang et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 037201 (2004).
7. P. M. Krstajic, F. M. Peeters, V. A. Ivanov, V. Fleurov, and K. Kikoin, Phys. Rev B **70**, 195215 (2004).
8. E. Abe, F. Matsukura, H. Yasuda et al., Physica E **7**, 981 (2000); F. Matsukura, E. Abe, Y. Ohno, and H. Ohno, Appl. Surf. Science **159–160**, 265 (2000).
9. H. Luo, G. V. Kim, M. Cheon et al., Physica E **20**, 338 (2004).
10. P. Mahadevan and A. Zunger, Phys. Rev. B **68**, 075202 (2003).
11. Ч. Киттель, *Введение в физику твердого тела*, Наука, Москва (1978).
12. А. В. Ведяев, А. Б. Грановский, О. А. Котельникова, *Кинетические явления в неупорядоченных ферромагнитных сплавах*, Изд-во МГУ, Москва (1992).
13. T. Jungwirth, Q. Niu, and A. H. McDonald, Phys. Rev. Lett. **88**, 207208 (2002).
14. A. M. Nazmul, S. Sugahara, and M. Tanaka, Phys. Rev. B **67**, 241308R (2003).
15. F. Matsukura, D. Chiba, T. Omiya et al., Physica E **12**, 351 (2002).
16. T. Adhikari and S. Basu, J. Magn. Magn. Mat. **161**, 282 (1996).
17. K. W. Edmonds, R. P. Campion, K.-Y. Wang et al., J. Appl. Phys. **93**, 6787 (2003).
18. T. Dietl, F. Matsukura, H. Ohno et al., E-print archives, cond-mat/0306484.
19. P. S. Dutta, H. L. Bhat, and V. Kumar, J. Appl. Phys. **81**, 5821 (1997).
20. A. Gerber, A. Milner, M. Karpovsky et al., Phys. Rev. B **69**, 134422 (2004); A. Gerber, A. Milner, M. Karpovsky et al., J. Magn. Magn. Mat. **242–245**, 90 (2002).
21. К. П. Белов, *Магнитные превращения*, Физматгиз, Москва (1959); A. Arrott, Phys. Rev. **108**, 1394 (1957).
22. D. K. Bowen and B. K. Tanner, *High Resolution X-ray Diffractometry and Topography*, Taylor and Francis (1998) (пер.: Д. К. Боуэн, Б. К. Таннер, *Высокоразрешающая рентгеновская дифрактометрия и топография*, Наука, Санкт-Петербург (2002)).
23. S. Basu and T. Adhikari, J. Alloy. Comp. **205**, 81 (1994).
24. D. P. Woodruff and T. A. Delchar, *Modern Techniques of Surface Science*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (1986) (пер.: Д. Вудраф, Т. Делчар, *Современные методы исследования поверхности*, Мир, Москва (1989)).

25. M. V. Yablonskikh, Yu. M. Yarmoshenko, E. G. Gerasimov et al., *J. Magn. Magn. Mat.* **256**, 396 (2003).
26. C. J. Powell, *Appl. Surf. Sci.* **89**, 141 (1995).
27. И. К. Кикоин, Н. А. Бабушкина, Т. Н. Игошева, *ФММ* **10**, 488 (1960).
28. Б. А. Аронзон, Д. Ю. Ковалев, А. Н. Лагарьков и др., *Письма в ЖЭТФ* **70**, 87 (1999).
29. A. B. Granovsky, A. V. Vedyayev, and F. Brouers, *J. Magn. Magn. Mat.* **136**, 229 (1994).
30. S. M. Sze, *Physics of Semiconductor Devices*, Wiley Publ., New York (1981) (пер.: С. Зи, *Физика полупроводниковых приборов*, Мир, Москва (1984)).
31. В. В. Рыльков, Б. А. Аронзон, А. Б. Давыдов и др., *ЖЭТФ* **121**, 908 (2002).
32. Е. З. Мейлихов, *ЖЭТФ* **116**, 2182 (1999).
33. Ю. И. Петров, *Физика малых частиц*, Наука, Москва (1982).
34. P. Walser, M. Hunziker, T. Speck et al., *Phys. Rev. B* **60**, 4082 (1999); R. R. Gareev, D. E. Burgler, M. Buchmeier et. al., *Phys. Rev. Lett.* **87**, 157202 (2001).