

## АНОМАЛИИ МАГНИТНЫХ И ГАЛЬВАНОМАГНИТНЫХ СВОЙСТВ РАЗБАВЛЕННЫХ ТВЕРДЫХ РАСТВОРОВ $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$

Кульбачинский В. А., Свистунов И. В., Чудинов С. М.,  
Кузнецов В. Д., Арушанов Э. К., Захвалинский В. С.,  
Натепров А. Н.

Исследованы магнитная восприимчивость и гальваномагнитные свойства магнитных разбавленных твердых растворов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  с  $0 \leq x \leq 0.13$  при 2—250 К в магнитных полях  $H$  от 2 Э до 60 кЭ. При  $H \leq 25$  Э обнаружены переходы в состояние спинового стекла с температурой перехода  $T_{SG} < 5$  К. Исследован гистерезис зависимости магнитной восприимчивости  $\chi$  от температуры при охлаждении и нагревании образца в магнитном поле и в его отсутствие, объясняющийся наличием кластеров из ионов Mn и большой магнитной вязкостью системы магнитных моментов. Обнаружены эффект Кондо, отрицательное магнитосопротивление и аномальный эффект Холла. Определено значение обменного интеграла  $J_{s-d}$ -взаимодействия электронов с магнитными примесями Mn.

*Введение.* Система сплавов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  в области составов  $x \leq 0.15$  представляет собой непрерывный ряд твердых растворов замещения, одним из компонентов которых является широкозонный полупроводник  $Zn_3As_2$ , а другим — магнитный полупроводник  $Mn_3As_2$ . Подобные системы в настоящее время получили название полумагнитных полупроводников (ПМПП) [1, 2]. Диапазон изменения свойств у ПМПП является более широким, чем у полупроводников с узкой запрещенной зоной, уже нашедших разнообразные применения в электронной технике.

Важнейшие свойства ПМПП связаны с намагниченностью системы магнитных примесей во внешнем магнитном поле. В связи с этим исследование магнитных характеристик ПМПП является одной из актуальных физических задач. Добавим, что с изучением магнитных характеристик ПМПП в слабых полях тесно связаны проблемы исследования переходов в состояние спинового стекла при низких температурах, а также изучения самого этого состояния, которое обладает целым рядом необычных свойств (неэргодичностью, большими временами релаксации спинов, большим гистерезисом свойств при изменении температуры и т. д.).

Среди чисто физических проблем, которые ждут своего решения при изучении ПМПП, в качестве первостепенных можно назвать задачи по исследованию механизмов обменного взаимодействия между ионами переходного металла, а также между электронами проводимости и магнитной подсистемой.

Система  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  и родственная ей система  $(Cd_{1-x}Mn_x)_3As_2$  образуют новое семейство ПМПП, которое было синтезировано и начало изучаться только в последние годы. В настоящее время сведения о магнитной фазовой диаграмме этих семейств не совсем полны.

Имеются данные о гистерезисе температурных зависимостей магнитной восприимчивости  $\chi$ , полученные при различных режимах охлаждения образцов [3, 4].

Настоящая работа посвящена исследованию магнитных свойств твердых растворов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  и изучению взаимодействия зонных носителей тока с ионами переходного металла.

Целью магнитных измерений явилось детальное исследование кривых температурной зависимости магнитной восприимчивости и намагниченности  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  в слабых магнитных полях при различных режимах охлаждения образцов, направленное на выяснение природы гистерезиса и других аномалий, которые могут быть связаны с образованием фазы спинового стекла.

В настоящей работе исследованы также гальваномагнитные эффекты в  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  при гелиевых и промежуточных температурах  $1.7 \leq T \leq \leq 250$  К в магнитных полях  $H$  до 60 кЭ.

Все измерения магнитных свойств сплавов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  выполнены с помощью сквид-магнитометра.

Гальваномагнитные и магнитные измерения проведены на монокристаллических образцах  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$ , выращенных из смеси  $Zn_3As_2$  и  $Mn_3As_2$  модифицированным методом Бриджмена. Концентрация Mn в исследованных сплавах менялась в пределах  $0 \leq x \leq 0.13$ . Монокристалличность и монофазность образцов контролировалась рентгенофазовым методом.

## МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$

$(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  являются широкозонными полупроводниками с величиной энергетической щели  $E_g \sim 1$  эВ [5, 6].

Кристаллическая структура, магнитные свойства, теплоемкость и фотомангнитные эффекты в системе  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  ранее были изучены в целом ряде работ [3, 4, 6, 7]. Интерпретация полученных в этих работах данных содержит некоторые противоречия, что в первую очередь касается предположения о возможности перехода  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  с  $x=0.1$  в состояние спинового стекла при  $T \sim 200$  К.

В настоящее время наиболее детальные сведения о магнитных свойствах  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  в слабых и сильных полях, полученные путем измерения магнитной восприимчивости, намагниченности и магнитной части теплоемкости, приведены в работе [3]. В ней установлено, что образцы  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  в области концентраций Mn до  $x \leq 0.15$  обладают парамагнитными свойствами со слабым обменным взаимодействием между ионами Mn, носящим антиферромагнитный характер. В области температур  $T \leq 6$  К в сплавах с  $x \leq 0.15$  наблюдаются характерные максимумы на кривой магнитной восприимчивости, указывающие на переходы в состояние спинового стекла. Другим свойством системы  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  является увеличение наклона линейного участка на зависимости  $\chi^{-1}$  от  $T$  при уменьшении температуры ниже 50—150 К [3]. Вместе с тем оба линейных участка — высокотемпературный и низкотемпературный — экстраполируются в область отрицательных температур, что указывает на антиферромагнитный характер взаимодействия между локализованными магнитными моментами (ЛММ). Аналогичное изменение наклона линейного участка на кривых  $\chi^{-1}$  от  $T$  при некоторой температуре  $T = T_p$  наблюдалось ранее и на других ПМПП с ионами Mn ( $Hg_{1-x}Mn_xTe$ ,  $Hg_{1-x}Mn_xSe$ ,  $Pb_{1-x}Mn_xTe$ ,  $Pb_{1-x}Mn_xSe$ ) [8-11].

Такое поведение магнитной восприимчивости объясняется наличием в ПМПП магнитных кластеров, состоящих из нескольких близкорасположенных магнитных ионов Mn, между которыми существует обменное взаимодействие антиферромагнитного типа. При  $T > T_p$  тепловые колебания разрушают обменные связи внутри кластеров, так что в области высокотемпературного линейного участка на зависимости  $\chi^{-1}$  от  $T$  каждый ион Mn вносит свой вклад в восприимчивость как независимый магнитный момент [12].

На низкотемпературном линейном участке  $T < T_p$  зависимость  $\chi^{-1}$  от  $T$  также может быть описана выражением, по форме совпадающим с законом Кюри—Вейсса:

$$\chi = \frac{xN_0S(S+1)(g\mu_B)^2}{3k(T-\theta)}. \quad (1)$$

Здесь  $S$  и  $g$  — величина спина и гиромангнитный фактор магнитного иона,  $\mu_B = e\hbar/2m_0c$  — магнетон Бора,  $N_0$  — число элементарных ячеек в единице

объема ПМПП. Величиной  $k\Theta$  описываются величина и знак обменного взаимодействия между магнитными ионами в приближении молекулярного поля, каким описывается и высокотемпературный участок, однако при  $T < T_p$  в (1) входят иная характеристическая температура  $\Theta^*$ , отличающаяся от  $\Theta$  на высокотемпературном линейном участке ( $|\Theta^*| < |\Theta|$ ), и дополнительный эффективный параметр  $x^* < x$  [13]. Параметры  $\Theta^*$  и  $x^*$  отражают эффект кластерообразования, величина  $x/x^*$  определяет среднее число магнитных ионов в доминирующих кластерах. Другим экспериментально наблюдаемым свой-

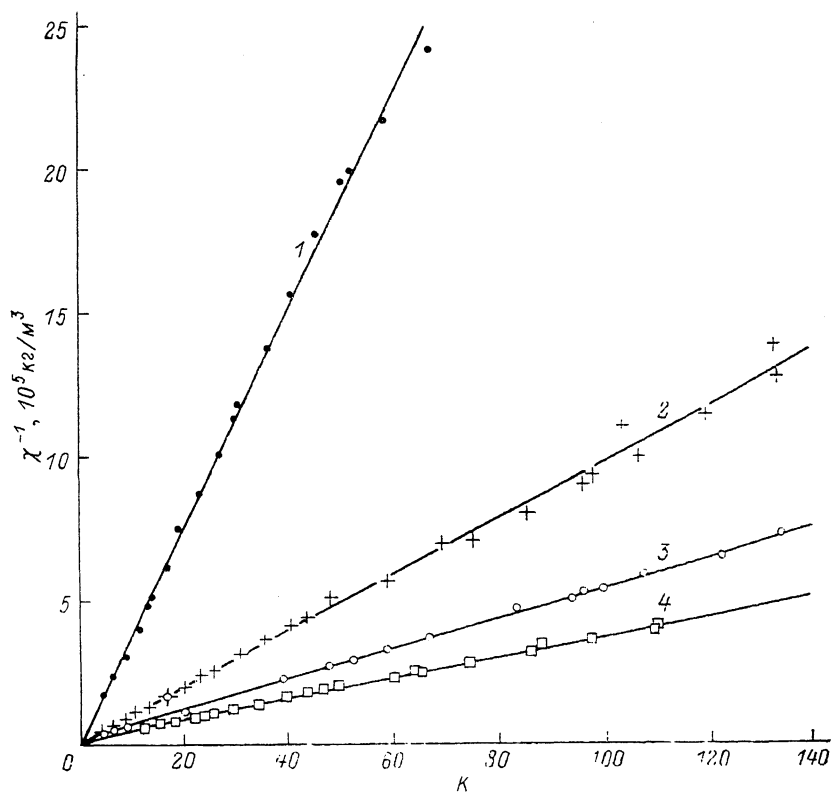


Рис. 1. Зависимости обратной магнитной восприимчивости от температуры образцов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  с различным содержанием марганца.  $x$ : 1 — 0.02; 2 — 0.01; 3 — 0.005; 4 — 0.001.

ством магнитной восприимчивости  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  [4] является гистерезис температурных зависимостей восприимчивости, полученных при охлаждении образца в слабом магнитном поле, при его охлаждении в нулевом поле и последующем отогреве в магнитном поле.

### Результаты измерений

Измерения магнитных свойств проведены в области температур 2—250 К в магнитных полях 2—4000 Э на сквид-магнитометре.

Магнитная восприимчивость образцов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  в интервале концентраций  $0.001 \leq x \leq 0.13$  соответствует восприимчивости парамагнетика и может быть описана законом Кюри—Вейсса (1) с различными значениями параметров  $\Theta$  и  $x$  (рис. 1). При измерении магнитной восприимчивости в слабых магнитных полях ( $H \leq 50$  Э) наблюдается заметное различие температурных зависимостей  $\chi(T)$ , полученных при охлаждении образца или при его отогреве от геллевых температур (рис. 2). Температурный гистерезис увеличивается при уменьшении магнитного поля до единиц эрстед, а также при увеличении концентрации Mn. В полях  $H$  в несколько килоэрстед гистерезис не наблюдается. Различие между

кривыми практически исчезает при  $T \sim 150-200$  К. В области низких температур ( $T < 5$  К) на зависимости  $\chi(T)$  в слабых полях ( $H \leq 25$  Э) наблюдаются

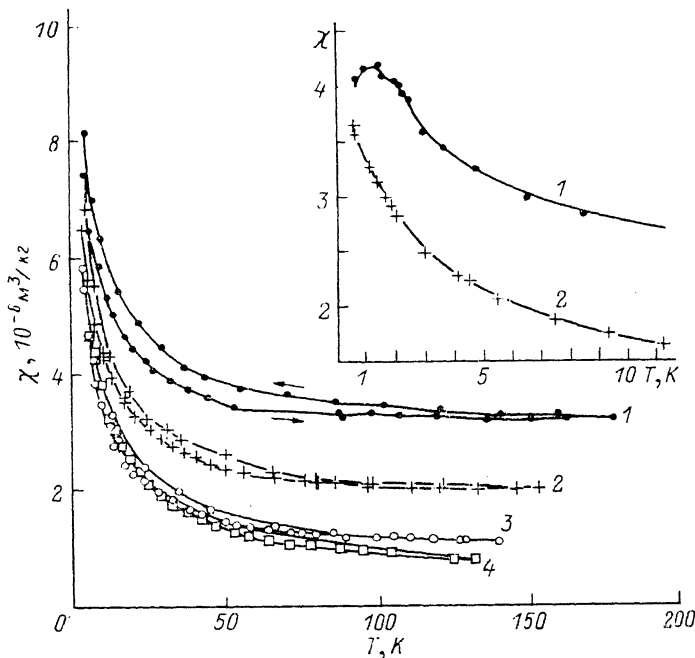


Рис. 2. Зависимости магнитной восприимчивости от температуры для  $(\text{Zn}_{0.95}\text{Mn}_{0.05})_3\text{As}_2$  в различных магнитных полях.

$H, \text{Э}: 1 - 2, 2 - 5, 3 - 10, 4 - 4000$ . На вставке показана зависимость  $\chi(T)$  в области перехода в состояние спинового стекла в магнитных полях  $H, \text{Э}: 1 - 25, 2 - 50; \alpha = 0.1$ .

характерные максимумы (рис. 2). Различие кривых, полученных при охлаждении и при отогреве, становится значительным по величине, а зависимости

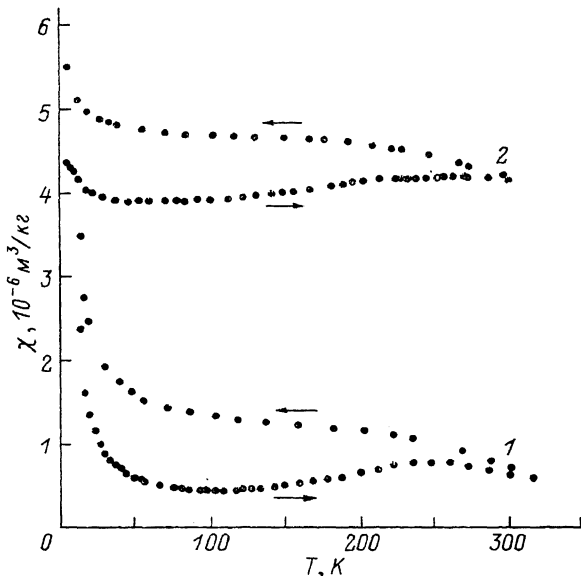


Рис. 3. Зависимости магнитной восприимчивости от температуры в поле  $H = 50$  Э для образцов с различным содержанием марганца.

$x: 1 - 0.02; 2 - 0.13$ . Перед этим циклом образцы охлаждались до 4.2 К в магнитном поле порядка поля Земли.

$\chi(T)$  приобретают качественно различный характер, если кривая, соответствующая отогреву образца, получена путем его предварительного охлаждения

в нулевом магнитном поле (на практике — в магнитном поле Земли), последующего включения магнитного поля при самой низкой температуре, затем отогрева образца в постоянном магнитном поле. В сплавах  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  с  $0.08 \leq x \leq 0.13$  кривые отогрева, полученные таким образом в поле  $H \sim 50$  Э, имеют минимум  $\chi$  при некоторой температуре, зависящей от состава сплава [интервал температур минимума зависимостей  $\chi(T)$  30—90 К], далее восприимчивость возрастает с температурой, проходит через максимум при  $T \sim 190$ —260 К и начинает убывать. При температурах 200—300 К кривая  $\chi(T)$ , полученная указанным выше образом при отогреве, сливается с кривой  $\chi(T)$ , измеренной при охлаждении образца в магнитном поле той же величины от комнатной температуры (рис. 3). Отметим также, что значения магнитной восприимчивости при самой низкой температуре ( $T \sim 4$  К) на кривой охлаждения превосходят соответствующие значения  $\chi$  на кривой нагрева в 1.2—1.3 раза.

Обратим также внимание на то, что кривые  $\chi(T)$ , полученные при охлаждении образца в магнитном поле, имеют два участка, описываемых зависимостью типа закона Кюри—Вейсса (1), между которыми при температурах 80—180 К имеется характерное плато (рис. 3).

В области гелиевых температур на зависимостях  $\chi(T)$  в слабых полях ( $H \sim 24$  Э) наблюдается отчетливый максимум, который при повышении магнитного поля смещается в область более низких температур и при  $H \geq 45$  Э полностью исчезает (рис. 2). Температура  $T_{SG}$ , которая соответствует максимуму на  $\chi(T)$ , увеличивается с ростом концентрации Mn в сплаве.

### Обсуждение результатов

Принципиально новым результатом настоящей работы является обнаружение количественного и качественного различия зависимостей  $\chi(T)$ , полученных при охлаждении и отогреве образцов в магнитном поле  $H \sim 50$  Э описанным выше способом.

Нам представляется, что характер кривых  $\chi(T)$  и факт их качественного различия могут быть связаны с наличием в  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  кластеров из атомов Mn, на существование которых указывают авторы работы [3].

Кластеры представляют собой небольшие по объему агрегаты, обычно не более триад, расстояние между атомами Mn в которых существенно меньше среднего расстояния  $R_{Mn}$  между этими атомами.  $R_{Mn}$  можно вычислить из величины концентрации  $N_{Mn}$  магнитной примеси:  $R_{Mn} = N_{Mn}^{-1/3}$ . Отдельные атомы Mn как внутри кластера, так и в разных кластерах испытывают обменное взаимодействие антиферромагнитного типа. Энергия  $J_{кл}$  этого взаимодействия в кластере доминирующего размера соответствует некоторой температуре  $T_p = J_{кл}/k$ , которая делит зависимость  $\chi(T)$  на высокотемпературную  $T > T_p$  (в качестве ЛММ выступают отдельные атомы Mn) и низкотемпературную  $T < T_p$  (ЛММ ассоциируется с отдельным кластером). Очевидно, что в низкотемпературной области концентрация ЛММ меньше концентрации атомов Mn из-за антиферромагнитного упорядочения внутри отдельного кластера при  $T < T_p$ . Представление о кластерах полностью объясняет характер зависимости  $\chi(T)$ , полученной при охлаждении образца в магнитном поле от комнатной температуры. Область плато на зависимости  $\chi(T)$  при 80—180 К соответствует области температур вблизи  $T_p$ , когда меняются концентрация и характер носителей элементарного магнитного момента. Эта область температур полностью соответствует области перехода от высокотемпературного линейного участка на зависимости  $\chi^{-1}$  от  $T$  к низкотемпературному [3]. Таким образом, при низких температурах сплав ZMA с концентрацией Mn ниже порога протекания должен переходить в состояние кластерного спинового стекла. Если охлаждение сплава произошло в отсутствие внешнего магнитного поля, то средняя намагниченность в фазе спинового стекла равна нулю.

При охлаждении сплава во внешнем поле конечной величины магнитные моменты отдельных кластеров получают преимущественную ориентацию, и возникает конечная величина намагниченности при низких температурах, которая

сохраняется и при выключении поля благодаря эффекту магнитной вязкости, препятствующей повороту магнитных моментов при  $T < T_{SG}$  в течение достаточно большого времени.

Таким образом, характерные максимумы на зависимостях  $\chi(T)$ , полученных при охлаждении, наблюдаются в слабых магнитных полях ( $H \sim 25$  Э) и исчезают в полях  $H \geq 40$  Э. Эти максимумы представляют собой переходы в состояние спинового стекла, а их температура может быть названа температурой образования спинового стекла  $T_{SG}$ .

Рассмотрим теперь процесс отогрева сплава в магнитном поле, предварительно охлажденного до температуры  $T < T_{SG}$  в поле  $H=0$  (или в очень малом поле, порядка поля Земли). Включенное при  $T < T_{SG}$  небольшое магнитное поле из-за магнитной вязкости не может существенно ориентировать магнитные моменты кластеров, и восприимчивость, и магнитный момент сплава остаются меньше, чем те же величины, полученные в результате охлаждения системы во внешнем поле. Тем не менее некоторая поляризация ЛММ происходит, и намагниченность при повышении температуры начинает вести себя по закону типа Кюри—Вейсса, в который, однако, входит довольно низкая концентрация ЛММ, так как магнитная вязкость препятствует эффективному использованию вклада от всех кластеров, часть которых остается в замороженном состоянии с противоположными направлениями магнитных моментов ( $M$ ). Уменьшение  $\chi$  и  $M$  с ростом температуры по закону Кюри—Вейсса происходит до тех пор, пока не начнут разрушаться обменные связи в пределах кластера. Это приводит к существенному увеличению эффективной концентрации ЛММ, росту магнитной восприимчивости и магнитного момента.

Вместе с тем рост температуры приводит к уменьшению вклада в  $\chi$  и  $M$  отдельных ЛММ в соответствии с законом Кюри—Вейсса. Конкуренция этих двух процессов способствует образованию максимума в зависимостях  $\chi(T)$  или  $M(T)$  в области температур, при которых практически заканчивается процесс разрушения кластеров. При более высоких температурах концентрация ЛММ практически равна концентрации атомов Mn и кривая отогрева сливается с кривой охлаждения.

Таким образом, большое различие между зависимостями  $\chi(T)$  и  $M(T)$ , полученными при охлаждении и отогреве образца, по существу связано с наличием в системе магнитной вязкости и антиферромагнитного характера взаимодействия между ионами Mn. При охлаждении в магнитном поле, которое поляризует ЛММ атомов Mn и препятствует их антиферромагнитному упорядочению в пределах кластера, процесс формирования кластеров и связанное с ним уменьшение эффективной концентрации ЛММ в сплаве затягиваются до более низких температур, чем это происходит в отсутствие поля. Кроме того, в магнитном поле менее вероятно антиферромагнитное упорядочение соседних кластеров, что приводит к большей концентрации поляризованных ЛММ при самых низких температурах в состоянии спинового стекла и, следовательно, к большему значению намагниченности.

Таким образом, максимум в зависимости  $\chi(T)$  при температурах  $T \sim 190$ — $260$  К является своеобразным откликом на размораживание системы магнитных кластеров при повышении температуры.

## ГАЛЬВАНОМАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$

### Экспериментальные результаты

При  $H=0$  электропроводность  $\sigma$  чистой компоненты  $Zn_3As_2$ , а также сплавов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  с  $0.01 \leq x \leq 0.13$  носит металлический характер в области высоких температур, типичный для сильно легированных полупроводников при температурах выше температуры вырождения.

При некоторой температуре в интервале  $50$ — $100$  К, зависящей от состава сплава, металлический тип проводимости сменяется полупроводниковым (рис. 4).

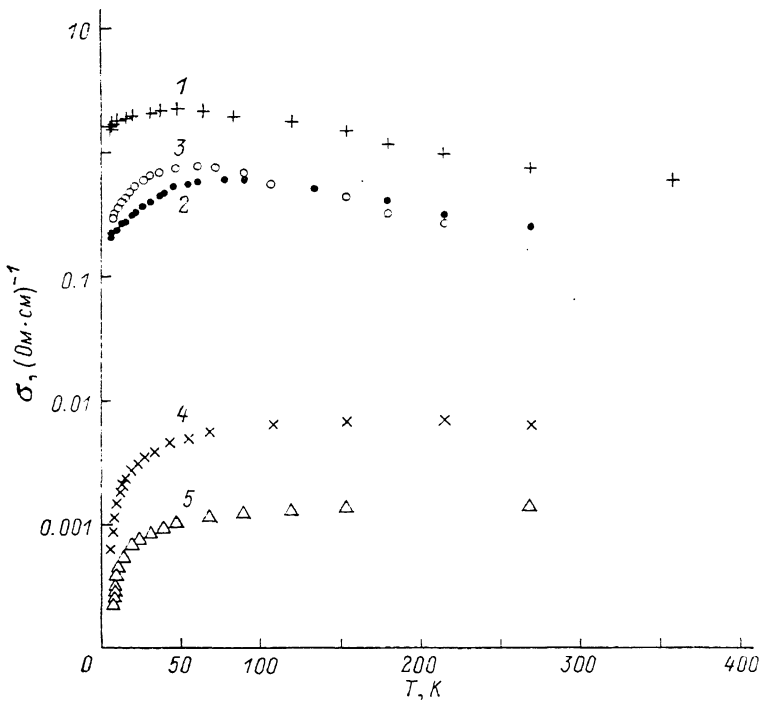


Рис. 4. Зависимости проводимости от температуры образцов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  с различным содержанием марганца.  
 x: 1 — 0.01; 2 — 0.02; 3 — 0.08; 4 — 0.1; 5 — 0.13.

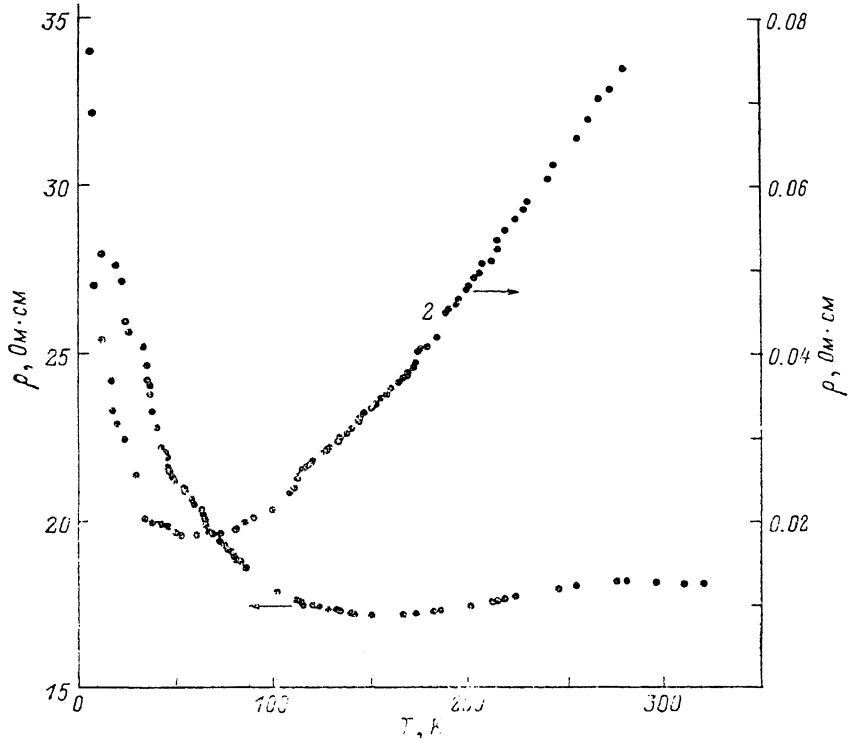


Рис. 5. Зависимости удельного сопротивления от температуры двух образцов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  с различным содержанием марганца.  
 x: 1 — 0.13; 2 — 0.01.

Смена характера температурной зависимости проводимости и максимум на зависимостях  $\sigma$  от  $T$  более наглядно иллюстрируют температурные зависимости удельного сопротивления  $\rho(T)$  (рис. 5). Практически во всех исследованных сплавах величина  $\rho$  убывает при понижении температуры, проходит через минимум при некоторой температуре  $T_{\min}$ , зависящей от состава, возрастает при дальнейшем понижении температуры и стремится к насыщению в области гелиевых температур. Характерно, что при  $T < T_{\min}$  увеличение сопротивления в некотором интервале температур происходит в первом приближении по логарифмическому закону  $\rho \sim -\ln T$ . Типичные зависимости  $\rho$  от  $\ln T$  для нескольких сплавов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  различных составов показаны на рис. 6.

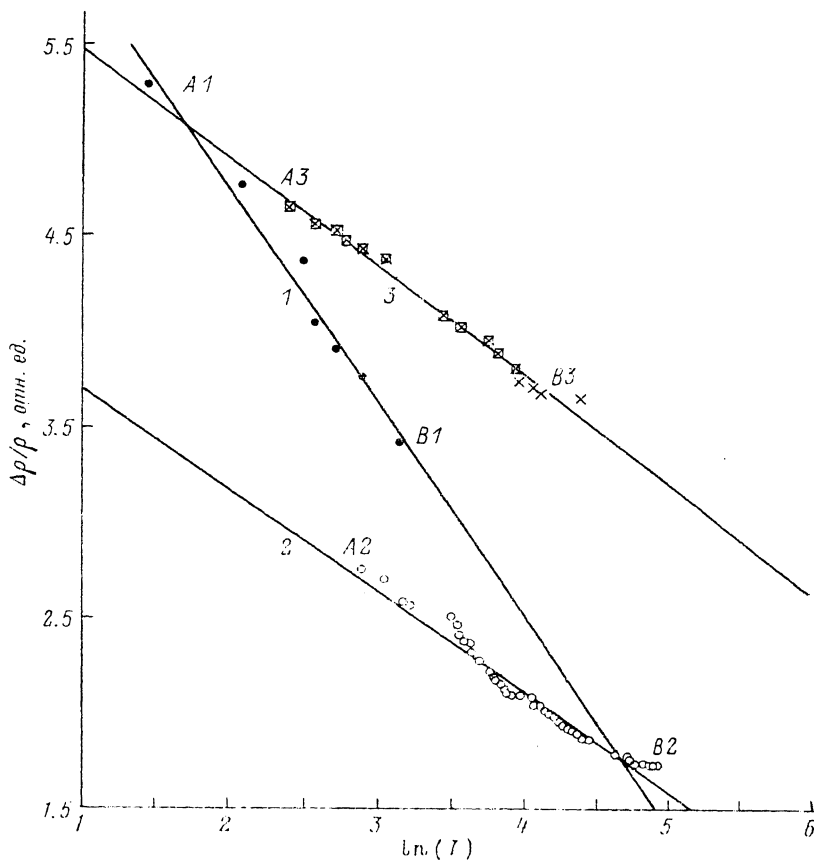


Рис. 6. Зависимости относительного изменения сопротивления от логарифма температуры образцов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$ .

$x$ : 1 — 0.01; 2 — 0.1; 3 — 0.13.

Для всех исследованных сплавов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  наблюдается качественно-однотипная эволюция зависимости сопротивления от магнитного поля при изменении температуры.

В области слабых полей при низких температурах наблюдается положительное магнитосопротивление (ПМС), которое на начальном участке возрастает в первом приближении пропорционально  $H^2$ . С ростом магнитного поля  $\rho(H)$  проходит через максимум при некотором значении  $H = H_{\max}$ , зависящем от состава и температуры. При  $H > H_{\max}$  ПМС уменьшается, проходит через нуль и переходит в отрицательное магнитосопротивление (ОМС). По мере увеличения температуры  $H_{\max}$  смещается в область более сильных полей, сам максимум становится все более размытым, а значение  $\rho(H_{\max})$  уменьшается. Начиная с некоторой температуры ПМС и максимум на кривой  $\rho(H)$  перестают наблюдаться, и зависимость  $\rho$  от  $H$  соответствует отрицательному магнитосопротивлению во всей области исследованных полей  $0 \leq H \leq 60$  кЭ. При одной и той же темпе-



ратуре с ростом концентрации Mn в сплаве максимум ПМС быстро смещается в область более слабых полей и становится все менее и менее выраженным. Зависимости  $\rho$  от  $H$  при различных температурах для сплава с  $x=0.01$  показаны на рис. 7.

Обратим внимание на то, что у сплава с  $x=0.01$  зависимость  $\rho(H)$  при  $T=3.3$  К более сложная, чем было описано выше: кроме максимума ПМС, эта кривая имеет промежуточное плато ПМС в области полей  $10 \leq H \leq 12.5$  кЭ. Для этого сплава при  $T \sim 19$  К ПМС не наблюдается, и зависимости  $\rho$  от  $H$  соответствуют только ОМС.

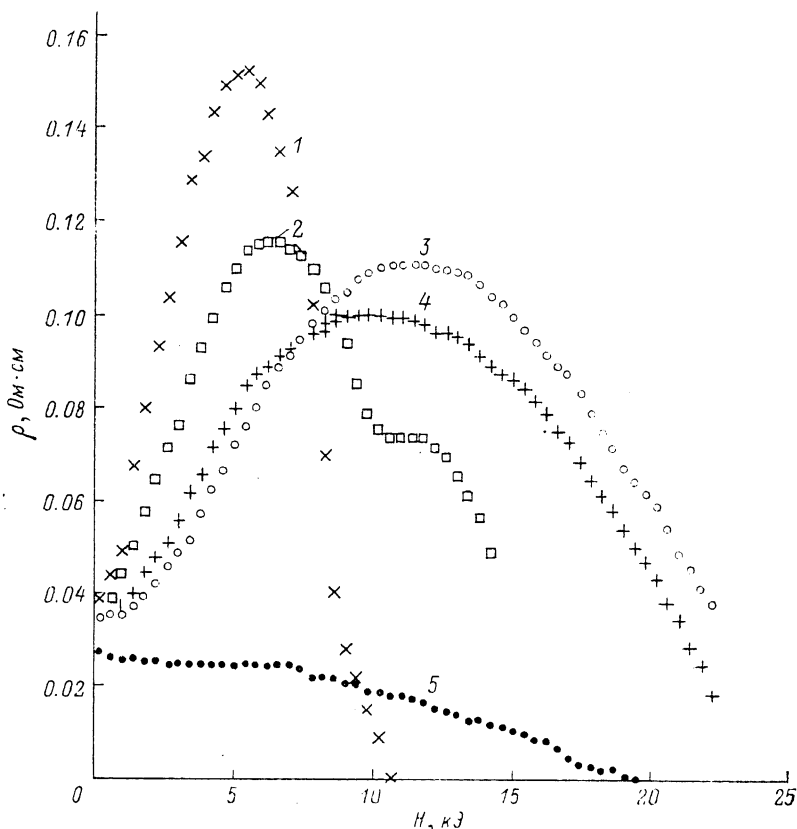


Рис. 7. Магнитосопротивление  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  с  $x=0.01$  при различных температурах.  $T$ , К: 1 — 2.2; 2 — 3.3; 3 — 4.2; 4 — 5.8; 5 — 19.

Необходимо отметить, что ОМС в сплавах  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  имеет характерные участки, на которых сопротивление убывает по логарифмическому закону. Типичное ОМС для сплава с  $x=0.02$  в логарифмических координатах приведено на рис. 8. Обратим внимание на то, что в области слабых полей зависимости ОМС от  $\ln H$  нелинейные и переходят в линейные при увеличении магнитного

Состав $x$	Холловская концентрация $n \cdot 10^{-23}, m^{-3}$	Величина энергии Ферми $E_F \cdot 10^{22}, Дж$	Температура Кондо $T_K$	Температура минимума $\rho$ $T, К$	Величина обменного интеграла $J \cdot 10^{23}, Дж$	
					$J_1$	$J_2$
0.01	2	5.1	11	50	7.3	4.1
0.02	2.5	6	15	65	9	5
0.1	3	6.7	32	130	11.5	11.6
0.13	3.2	7	40	150	12.3	12.6

Примечание. Значение интеграла  $J_1$  получено из выражения для температуры Кондо, а  $J_2$  — из тангенса угла наклона на зависимости удельного сопротивления от температуры. Значения холловской концентрации соответствуют температуре 4.2 К.

поля. По мере повышения температуры линейные в логарифмической шкале участки ОМС смещаются в область более сильных полей.

Все исследованные нами сплавы  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  имели дырочный тип проводимости. Коэффициент Холла измерен в магнитных полях до 20 кЭ. Обнаружено, что он слабо зависит от магнитного поля и температуры. В предположении наличия только одного типа носителей и относительно малого вклада аномальной составляющей, на основе холловских измерений была вычислена концентрация дырок при 4.2 К, которая приведена в таблице.

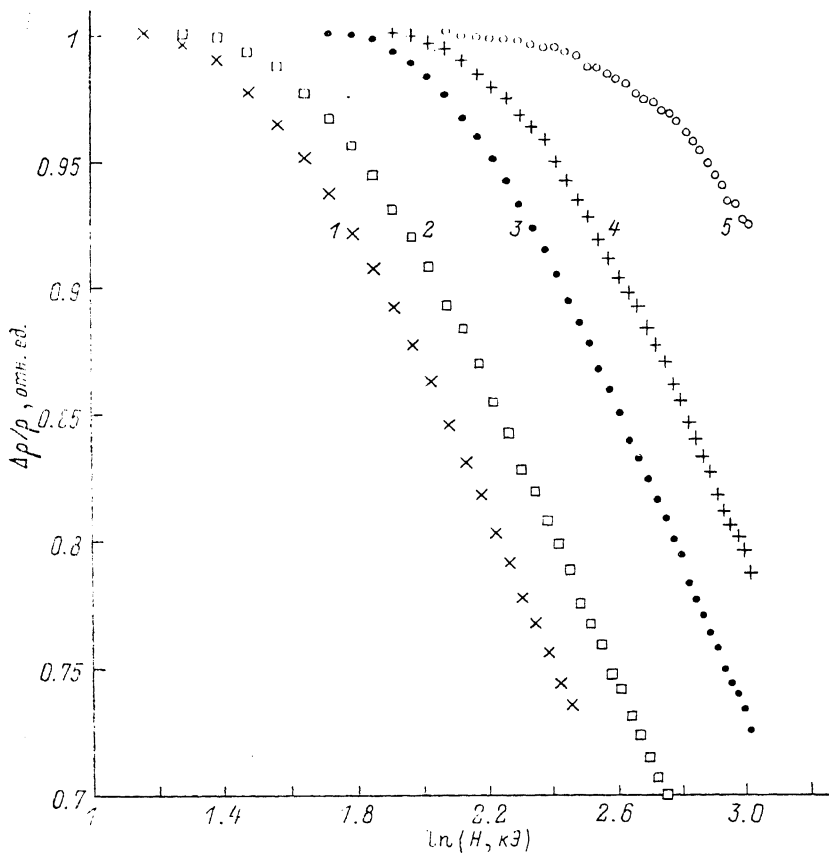


Рис. 8. Зависимость сопротивления от логарифма магнитного поля для образца с  $x=0.02$  при различных температурах.

$T, K: 1 - 3.3; 2 - 3.9; 3 - 4.2; 4 - 4.8; 5 - 5.$

### Обсуждение результатов

Известно, что сравнительно небольшие концентрации примесей переходных элементов в немагнитных металлах при полупроводниках приводят к аномальному поведению кинетических коэффициентов в гальваномагнитных эффектах. К их числу следует отнести логарифмическую зависимость удельного сопротивления от температуры, наличие ОМС и аномальный эффект Холла. Все эти аномалии гальваномагнитных эффектов являются следствием взаимодействия между магнитными моментами электронов проводимости и локализованными магнитными моментами (ЛММ) примесных атомов переходных элементов. Величина взаимодействия зависит от взаимной ориентации спина электрона проводимости и спина ЛММ. Если взаимодействие носит антиферромагнитный характер, то возможно рассеяние с одновременным изменением направлений спина электрона проводимости и спина примесного иона.

Механизм рассеяния с переворотом спина является неупругим, поскольку при изменении направления спина в магнитном поле  $H$  энергия электрона меняется на величину  $g\mu_B H$  ( $g$  — Фактор Ланде).

В связи с тем что магнитное поле ориентирует спины примесных атомов, при антиферромагнитном типе взаимодействия с магнитной примесью спин электрона проводимости в начальном состоянии до рассеяния с большой вероятностью ориентирован против магнитного поля. При этом электрон после рассеяния должен оказаться на уровне энергии, расположенном ниже уровня Ферми. При низких температурах такой элементарный акт рассеяния запрещен принципом Паули. Это означает, что включение внешнего магнитного поля подавляет значительную часть процессов рассеяния с переворотом спина, что приводит к снижению сопротивления в магнитном поле, т. е. к ОМС [14]. Теоретически ОМС, связанное с рассеянием на ЛММ, рассматривалось в целом ряде работ [15-18] на основе гамильтониана  $s$ - $d$ -обменного взаимодействия. При этом, в частности, было показано [17], что ОМС определяется спиновой компонентой намагниченности и примесных атомов, причем величина ОМС равна

$$\frac{\rho(H) - \rho(0)}{\rho(0)} = \left| \frac{\Delta\rho(H)}{\rho(0)} \right| \sim M^2. \quad (2)$$

В пределе слабых магнитных полей выражение (2) переходит в

$$\left| \frac{\Delta\rho}{\rho} \right| \sim \chi^2 H^2, \quad (3)$$

где  $\chi$  — магнитная восприимчивость. Отсюда следует, что определенная в [16] величина  $Q^{1/2} = \left( \frac{1}{H^2} \left| \frac{\Delta\rho}{\rho} \right| \right)^{1/2}$  должна быть пропорциональна магнитной восприимчивости и должна изменяться по закону Кюри—Вейсса в парамагнитной области. Зависимость  $\Delta\rho/\rho$  от  $H$  для ОМС в результате рассеяния на ЛММ определяется следующим выражением [18, 19]:

$$\frac{\Delta\rho(H)}{\rho_0} = -B_1^2 \ln(1 + B_2^2 H^2), \quad (4)$$

где коэффициенты  $B_1$  и  $B_2$  включают в себя физические характеристики обменного взаимодействия:

$$B_1 = A_1 J \nu(E_F) [S(S+1) + \langle M^2 \rangle], \quad (5)$$

$$B_2 = [g^2 \mu_B^2 / (\alpha kT)^2] \left[ 1 + 4\pi^2 S^2 \left( \frac{2J \nu(E_F)}{n} \right)^4 \right],$$

где  $A_1 = AN_A \sigma_j^2 / \sigma_0^2$ . Здесь  $J$  — интеграл обменного  $s$ - $d$ -взаимодействия,  $\nu(E_F)$  — плотность состояний на уровне Ферми  $E_F$ ,  $S$  — спин магнитной примеси,  $n$  — концентрация носителей тока,  $N_A$  — число элементарных ячеек в кристалле,  $\sigma_j$ ,  $\sigma_0$  — эффективные сечения рассеяния на магнитных примесях и во всех других каналах релаксации,  $A$  и  $\alpha$  — константы порядка единицы.

Помимо механизма рассеяния на ЛММ вклад в ОМС могут внести также квантовые поправки к проводимости, обусловленные наличием случайного потенциала в ПМПП, представляющем собой твердый раствор замещения [20].

Обратим внимание на то, что экспериментально измеряемая величина магнитосопротивления является суммой ПМС и ОМС. ПМС обусловлено действием силы Лоренца на носители заряда и может быть представлено в виде

$$\frac{\Delta\rho(H)}{\rho(0)} = \mu^2 H^2, \quad (6)$$

где  $\mu$  — подвижность. Отсюда следует, что ОМС может быть найдено из экспериментальных кривых для  $\Delta\rho(H)/\rho(0)$  путем вычитания ПМС (6).

Логарифмическая температурная зависимость сопротивления разбавленных растворов магнитных примесей теоретически была объяснена Кондо в работе [21], согласно которой взаимодействие электронов проводимости с ЛММ

магнитных ионов, описываемое обменным интегралом  $J$ , дает следующий вклад в сопротивление:

$$\rho_{\text{spin}} = x\rho_M \left( 1 + \frac{3J}{2E_F} \ln \frac{kT}{E_F} \right), \quad (7)$$

где

$$\rho_M = \frac{3\pi m_d J^2 S(S+1)}{2e^2 \hbar E_F^2 n}, \quad (8)$$

$m_d$  — масса плотности состояний носителей тока,  $x$  — относительная концентрация магнитных ионов.

При отрицательных  $J$  (антиферромагнитный характер взаимодействия) формула (7) объясняет логарифмическое возрастание удельного сопротивления при понижении температуры. Величина обменного интеграла  $J$  может быть определена также по значению температуры Кондо  $T_K$ , которая соответствует середине логарифмического участка на зависимости  $\rho$  от  $T$ . На рис. 6 для нескольких образцов  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  приведены линейные участки  $A1-B1$ ,  $A2-B2$ ,  $A3-B3$  на зависимостях удельного сопротивления  $\rho$  от логарифма температуры, середины которых на шкале температур соответствуют температуре Кондо:

$$T_K = \left( \frac{D}{k} \right) \exp \left( - \frac{n}{2|J|v(E_F)} \right), \quad (9)$$

где  $D$  — ширина разрешенной зоны [в нашем случае — валентной зоны в  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$ ],  $D \sim 1-5$  эВ.

Помимо ОМС и эффекта Кондо взаимодействие носителей тока с магнитными ионами приводит к появлению аномального эффекта Холла (АЭХ). Еще в ранних работах, посвященных исследованию этого эффекта, было установлено, что он в отличие от обычного эффекта Холла связан не с величиной внешнего магнитного поля  $H$ , а с намагниченностью  $M$  образца [22]. При этом холловское сопротивление  $\rho_{xy}$  связано с константами обычного нормального  $R_H$  и аномального  $R_a$  эффектов Холла следующим выражением:

$$\rho_{xy} = R_H H + R_a M. \quad (10)$$

Теория АЭХ получила развитие в ряде работ [23-26]. Аномальный эффект Холла связан с асимметрией рассеяния, приводящей к появлению электрического поля, вектор которого перпендикулярен току. В работе [27] дается выражение для суммарного коэффициента Холла в слабых магнитных полях, при которых  $\mu_B H \ll kT$ :

$$R = R_H + a\rho/(T + \Theta), \quad (11)$$

где  $\rho$  — удельное сопротивление,  $a$  — некоторая константа, зависящая от состава разбавленного раствора ПМПП.

Вид второго слагаемого в (11) становится понятным, если учесть, что в слабых полях  $M \approx \chi H$ , а  $\chi$  описывается законом Кюри—Вейсса.

Впервые в системе с ионами Mn АЭХ наблюдалась в образцах InSb, легированного Mn [28], и была обнаружена зависимость константы Холла от температуры по закону (11). Было установлено, что при концентрации дырок  $p \sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$  вклад АЭХ существен при температурах  $T \leq 14 \text{ K}$ , тогда как при  $T > 20 \text{ K}$  эффект Холла практически определяется нормальной компонентой.

Как показывают измерения гальваномагнитных эффектов в исследованных образцах, данные которых приведены на рис. 4-8, в  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$   $p$ -типа с концентрацией Mn  $0.01 \leq x \leq 0.13$  наблюдаются как ОМС, так и ярко выраженный максимум сопротивления при температуре  $T_{\text{min}}$ , который может быть связан с эффектом Кондо.

Действительно, как видно из рис. 5, рост сопротивления при понижении температуры при  $T < T_{\text{min}}$  достаточно хорошо согласуется с логарифмической зависимостью  $\rho \sim \ln T$ .

Заметим, что минимум сопротивления  $\rho$  при некоторой температуре может быть объяснен вкладом в проводимость квантовых поправок, связанных с ин-

терференцией носителей тока. В трехмерном случае, как показано в [20], сопротивление при  $T < T_{\min}$  возрастает пропорционально  $\sqrt{T}$ . Анализ экспериментальных данных показал, что они плохо согласуются с зависимостью  $\rho \sim \sqrt{T}$  при  $T < T_{\min}$ , кроме того оценки, проведенные с помощью формул для квантовых поправок для проводимости, показывают, что эти поправки не могут объяснить количественно величину изменения сопротивления при  $T < T_{\min}$  при любом, достаточно реалистическом выборе входящих в формулы параметров. Это позволяет сделать заключение, что аномальная зависимость сопротивления от температуры при  $T < T_{\min}$  практически полностью связана с эффектом Холла.

Измерение эффекта Холла в области гелиевых и промежуточных температур показывает, что коэффициент Холла не зависит от температуры при  $25 \leq T \leq 100$  К. В области  $T < 25$  К коэффициент Холла возрастает при понижении температуры, что указывает на присутствие в эффекте аномальной компоненты. При  $T \sim 100$  К коэффициент Холла убывает с температурой по экспоненциальному закону, что может быть связано со снятием вырождения дырок в  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  при  $T > T_D$ , где  $T_D$  — температура вырождения ( $T_D \sim E_F$ ). Действительно, если принять, что в интервале  $25 \leq T \leq 100$  К эффект Холла определяется в основном нормальной компонентой, и найти по ее значению концентрацию дырок  $p$  из соотношения  $R=1/epc$ , то во всех исследованных сплавах величина  $p$  будет лежать в пределах  $2 \cdot 10^{17} \leq p \leq 3.5 \cdot 10^{17}$  см<sup>-3</sup> (см. таблицу). Если учесть, что масса дырок в  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$   $m_p = 0.7 m_0$  [3], то энергия Ферми может быть оценена по формуле

$$E_F = \frac{(3\pi^2)^{2/3} \hbar^2 p^{2/3}}{2m_p}. \quad (12)$$

Полученные значения  $E_F$  приведены в таблице.

Пользуясь значениями концентрации  $p$  дырок в каждом сплаве, экспериментальными  $T_K$  и  $d(\Delta\rho/\rho)/d(\ln T)$ , можно подсчитать величину  $J$  по формулам (7) и (9).

Результаты расчета приведены в таблице. Во всех исследованных сплавах  $|J| \ll E_F$ , следовательно, теория эффекта Кондо может применяться для количественных оценок  $|J|$ . Как и следовало ожидать,  $|J|$  слабо или практически не зависит от состава сплава (в теории  $|J|$  представляет собой величину энергии  $s-d$ -взаимодействия, приходящуюся на один магнитный ион).

На рис. 8 построена отрицательная часть магнитосопротивления  $\Delta\rho(H)/\rho(0)$  как функция  $\ln H$ . Представляет интерес тот факт, что в области сильных полей на этих зависимостях наблюдаются отчетливые линейные участки, из чего можно сделать три важных вывода.

1. В области сильных полей для ОМС справедлива формула (4), которая при  $B_2 H^2 \gg 1$  сводится к выражению

$$\Delta\rho(H)/\rho(0) = -2B_1^2 (\ln H - \ln B_2).$$

2. Константа  $B_1$  не зависит от магнитного поля, следовательно, в выражении (5) в этой области полей  $\langle M^2 \rangle \ll S(S+1)$  либо  $\langle M^2 \rangle$  достигает насыщения (что менее вероятно).

3. Вклад ПМС  $\sim \mu^2 H^2$  в этой области полей либо мал по сравнению с ОМС из-за низкого значения подвижности, либо насыщается, в результате чего экспериментальные результаты по ОМС не нуждаются в корректировке на вычитание ПМС.

Таким образом, можно сделать вывод, что во всех исследованных сплавах  $(Zn_{1-x}Mn_x)_3As_2$  ОМС в основном связано с рассеянием носителей тока на ЛММ.

#### Список литературы

- [1] Brandt N. B., Moshchalkov V. V. // Adv. Phys. 1984. V. 33. N 3. P. 193—256.
- [2] Ляпилин И. И., Цидильковский И. М. // УФН. 1985. Т. 146. В. 1. С. 35—72.
- [3] Denissen C. J. M., Sun Dakun, Koriga K., de Jonge W. J. M. // Phys. Rev. 1987. V. B36. N 10. P. 5316.
- [4] Кульбачинский В. А., Свистунов И. В., Чудинов С. М., Кузнецов В. Д. и др. // Принт МГУ. М., 1991. № 10.

- [5] Pietrazko, Lukaszewics K. // Phys. St. Sol. 1979. V. A. 18. P. 723.
- [6] Arushanov E. K. // Prog. Cryst. Growth Charact. 1981. V. 3. P. 211.
- [7] De Vries G. C., Frikke E., Helmholtz R. B., Kopinga K., de Jonge W. J. M. // Physica. 1989. V. B156-B157. P. 321—323.
- [8] Pajaczkowska A., Pauthe R. // J. Magn. Magn. Mat. 1979. V. 21. N 3. P. 228—232.
- [9] Sondermann U. // J. Magn. Magn. Mat. 1980. V. 21. N 3. P. 228—232.
- [10] Bastard G., Lewiner C. // J. Phys. C: Sol. St. Phys. 1980. V. 13. N 12. P. 2347—2360.
- [11] Брандт Н. Б., Исмаилов Ж. Т., Кульбачинский В. А., Лашин С. А., Чудинов С. М. // Изв. вузов СССР. Сер. физ. 1989. № 11. С. 29—39.
- [12] Bramage W., Yarger C., Lin C. C. // Phys. Rev. 1964. V. 133. N 34. P. 765—767.
- [13] Heiman B., Wolff P. A., Warnock J. // Phys. Rev. 1983. V. B27. N 8. P. 4848—4860.
- [14] Beal-Monod M. T., Weiner R. A. // Phys. Rev. 1968. V. 170. N 2. P. 552—559.
- [15] Yjsida K. // Phys. Rev. 1957. V. 107. N 2. P. 396—403.
- [16] Toyozawa Y. // J. Phys. Soc. Japan. 1962. V. 17. N 6. P. 986—1004.
- [17] Appelbaum J. A. // Phys. Rev. 1967. V. 154. N 3. P. 633—643.
- [18] Khosla R. P., Fisher J. R. // Phys. Rev. 1970. V. B10. N 2. P. 4084—4097.
- [19] Kawabata A. // J. Phys. Soc. Japan. 1980. V. 49. N 2. P. 628—637.
- [20] Альтшулер Б. Л., Аронов А. Г., Ларкин А. И., Хмельницкий Д. Е. // ЖЭТФ. 1981. Т. 81. В. 2 (8). С. 768—783.
- [21] Kondo J. // Prog. Theor. Phys. 1964. V. 32. N 1. P. 37—49.
- [22] Андрианов Д. Г., Рашевская Е. П., Фистуль В. И. // ФТП. 1967. Т. 1. В. 9. С. 1435—1437.
- [23] Karplus R., Luttinger J. M. // Phys. Rev. 1954. V. 95. N 5. P. 1154—1160.
- [24] Kondo J. // Prog. Theor. Phys. 1962. V. 27. N 4. P. 772—792; 1963. V. 28. N 5. P. 846—856.
- [25] Berger L. // Phys. Rev. 1970. V. 2B. N 11. P. 4559—4566.
- [26] Giovannini B. // Phys. Lett. 1972. V. 42A. N 3. P. 256—258.
- [27] Fert A., Friederich A. // Phys. Rev. 1976. Ser. B. V. 13. N 1. P. 397—411.
- [28] Андрианов Д. Г., Лазарева Г. В., Савельев А. С., Селнина В. И., Фистуль В. И. // ФТП. 1975. Т. 9. В. 8. С. 1555—1560.

Московский государственный  
университет им. М. В. Ломоносова

Получена 2.07.1991  
Принята к печати 19.07.1991