

УДК 546.28

**МАГНИТОТРАНСПОРТНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО КРЕМНИЯ С ВКЛЮЧЕНИЯМИ ГАДОЛИНИЯ**

*канд. физ.-мат. наук Д.И. БРИНКЕВИЧ, канд. физ.-мат. наук, доцент С.А. ВАБИЩЕВИЧ,  
канд. физ.-мат. наук, доцент М.Г. ЛУКАШЕВИЧ, А.А. МАЗАНИК,  
канд. физ.-мат. наук В.С. ПРОСОЛОВИЧ, доктор хим. наук В.В. САМОХВАЛ, Ю.Н. ЯНКОВСКИЙ*

*В кремнии, легированном редкоземельным элементом Gd в концентрации  $1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ , при температуре жидкого азота обнаружено отрицательное магнитосопротивление, являющееся проявлением магниторезистивного эффекта, который заключается в ориентации внешним магнитным полем магнитных моментов кластеров лантаноида по направлению поля, что приводит к уменьшению рассеяния носителей заряда.*

**Введение.** Изучение спин-зависимого транспорта носителей заряда является активной областью экспериментальных и теоретических исследований в настоящее время. С одной стороны, это вызвано сложностью физических явлений, обусловленных в первую очередь механизмами рассеяния с сохранением или несохранением направления спина или же изменением спин-зависимой плотности состояний и степени поляризации спинов на уровне Ферми, и, с другой стороны, большими потенциальными возможностями промышленного применения в устройствах записи, хранения и считывания информации. Наибольший интерес как с фундаментальной, так и с практической точек зрения представляют магниторезистивные эффекты, наблюдаемые в магнито неоднородных системах, представляющих собой проводящую или изолирующую матрицы с включениями кластеров магнитных металлов. В случае проводящей матрицы наблюдается отрицательный так называемый «гигантский магниторезистивный эффект» (ГМС) [1, 2], а в случае изолирующей – туннельный магниторезистивный эффект [3, 4]. Значительный интерес при изучении этих явлений может представлять использование полупроводниковой матрицы, содержащей металлические магнитные включения. Она позволяет легко изменять механизм переноса заряда от зонного до прыжкового (туннельного) при изменении температуры, а введение магнитной примеси в расплав при выращивании кристаллов позволяет предполагать возможность образования интерметаллических соединений с разной степенью и типом магнитного упорядочения.

**Методы исследований.** В работе исследовались магнитополевые зависимости магниторезистивного эффекта и эффекта Холла в кремнии, легированном редкоземельным элементом (РЗЭ) Gd, проявляющим магнитные свойства в полупроводниковой матрице [5]. Легирование лантаноидом осуществлялось в процессе выращивания из расплава по методу Чохральского. Образцы вырезались из нижних частей слитка, где концентрация РЗЭ достаточно высока ( $10^{15} - 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ) и указанная примесь образует включения второй фазы [6, 7]. Концентрация Gd, измеренная методом нейтронно-активационного анализа, составляла  $1 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ . В качестве контрольных использовались монокристаллы специально нелегированного кремния, выращенного в идентичных условиях.

Магнитополевые зависимости магнитосопротивления и эффекта Холла исследовались в постоянном магнитном поле до 1,4 Тл в температурном интервале 20 – 300 К. Образцы вырезались в виде прямоугольных параллелепипедов. Для минимизации геометрических эффектов отношение длины образца к его ширине было не менее 8.

**Результаты и их обсуждение.** Согласно данным, полученным с помощью растровой электронной микроскопии, лантаноиды в кремнии локализуются в виде включений второй фазы, что обусловлено малым значением коэффициента сегрегации, а также захватом фронтом кристаллизации находящихся в расплаве капель жидкой примеси [6]. В исследованных образцах наблюдались бесформенные размытые включения размерами ~ 10 нм. Фотографирование этих включений в спектрах характеристического рентгеновского излучения показало, что эти макроскопические дефекты являются включениями, содержащими атомы Gd.

Исследованиями температурной зависимости холловской подвижности  $\mu_H(T)$  установлено, что во всех образцах ее ход соответствует рассеянию на акустических фонах, причем в образцах, легированных Gd, ее величина была примерно на 10 – 20 % меньше, чем в контрольном нелегированном материале. Этот результат хорошо согласуется с моделью, предложенной в [8], согласно которой в легированных образцах имеет место дополнительное рассеяние носителей заряда, обусловленное включениями лантаноидов. Из экспериментальных данных и соотношения  $\mu_H = AT^\alpha$  была определена величина показателя степени  $\alpha = -1,5$ , которая близка к значениям  $\alpha$ , характерным для контрольного нелегированного монокристалла.

Магнитополевая зависимость магниторезистивного эффекта контрольного и легированного Gd образцов при  $T = 300\text{ K}$  и  $77\text{ K}$  показана на рис. 1 и 2. Магнитосопротивление (МС) контрольных образцов положительно и имеет близкую к квадратичной

$$\Delta\rho/\rho_0 \sim b_r(\mu_H B)^\gamma, \text{ где } \gamma = 1,8 - 1,9,$$

зависимость от магнитного поля как при  $300\text{ K}$ , так и при  $77\text{ K}$  (кривые 1). Во всем исследованном интервале магнитных полей выполнялся критерий классически слабого ( $\mu_H B \ll 1$ ) магнитного поля, а величина коэффициента МС  $b_r$  лежала в пределах  $b_r = 0,2 - 0,4$ . Такая величина  $b_r$  характерна для рассеяния носителей заряда акустическими фононами ( $b_r^{\text{фон}} = 0,27$ ), что соответствует механизму рассеяния, определенному из температурной зависимости подвижности. Несколько завышенные значения  $b_r$  обусловлены дополнительным вкладом в МС геометрического эффекта из-за закорачивания эдс Холла токовыми контактами. Отметим, что закорачивание холловских контактов при измерении магниторезистивного эффекта приводит к увеличению его величины до 15 % и свидетельствует о лоренцовском механизме положительной компоненты магнитосопротивления.

Легирование гадолинием не изменяет общего вида зависимости МС от магнитного поля при  $T = 300\text{ K}$  (см. рис. 1), хотя величина магниторезистивного эффекта в легированных РЗЭ образцах существенно ниже. В то же время коэффициент магнитосопротивления в Si:Gd превышает максимальную теоретическую величину, характерную для рассеяния носителей ионами примеси ( $b_r^{\text{ион}} = 0,57$ ). Последнее свидетельствует о существенной неоднородности исследовавшихся образцов Si:Gd.

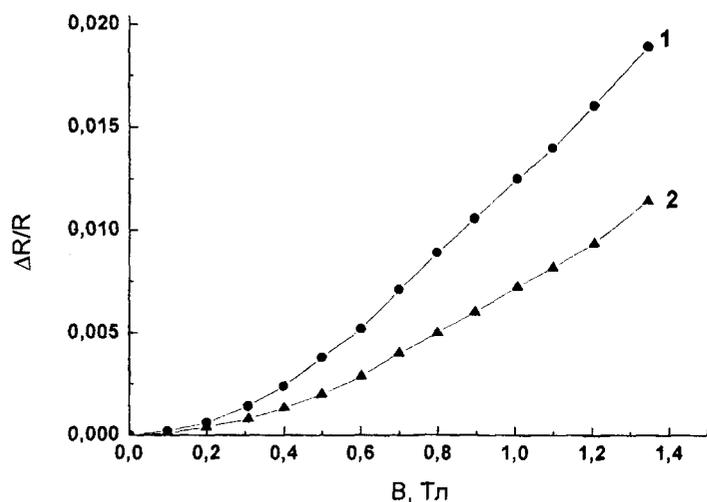


Рис. 1. Магнитополевая зависимость магнитосопротивления контрольного (1) и легированного Gd (2) образцов кремния при комнатной температуре

Понижение температуры приводит к изменению характера и величины магнитополевой зависимости МС (рис. 2, 3). В контрольных образцах магнитосопротивление положительно во всем исследовавшемся интервале магнитных полей, причем при  $B < 1\text{ Тл}$  наблюдается квадратичная магнитополевая зависимость, а при больших полях проявляется тенденция к насыщению. В Si:Gd МС отрицательно при  $B < 0,8\text{ Тл}$ ; при больших полях квадратично по полю и тенденции к насыщению не проявляет вплоть до  $1,4\text{ Тл}$ . Величина отрицательной компоненты в легированных Gd образцах достигает 0,5 %; максимально достижимый положительный магниторезистивный эффект составляет около 1 %, в то время как в исходном образце он на порядок больше. Измеряемый магниторезистивный эффект ( $\Delta R_{\Sigma}$ ) представляет собой алгебраическую сумму отрицательной ( $\Delta R_{-}$ ) и положительной ( $\Delta R_{+}$ ) компонент

$$\Delta R_{\Sigma} = \Delta R_{-} + \Delta R_{+},$$

причем в области слабых полей доминирует отрицательная, а в области сильных – положительная лоренцевская компонента магниторезистивного эффекта, поскольку для исследованных образцов в исследованном температурном интервале характерен когерентный механизм переноса заряда.

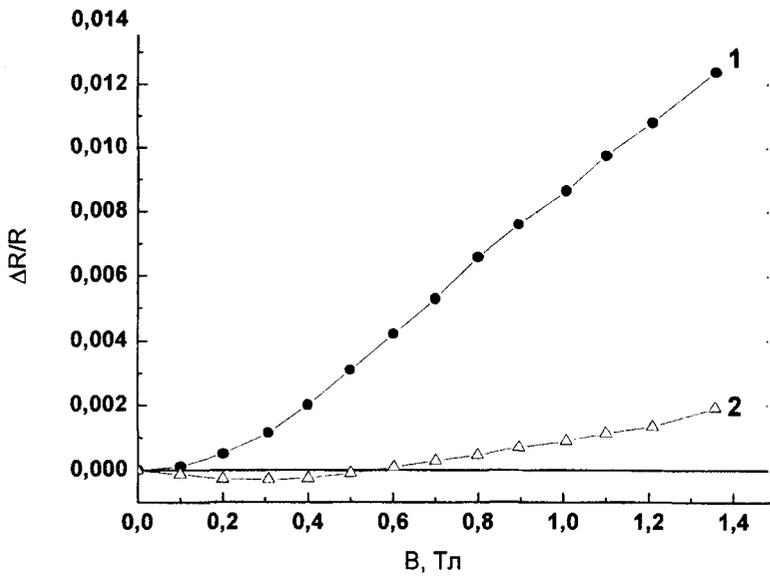


Рис. 2. Магнитолевая зависимость магнитосопротивления контрольного (1) и легированного Gd (2) образцов кремния при  $T = 77$  К

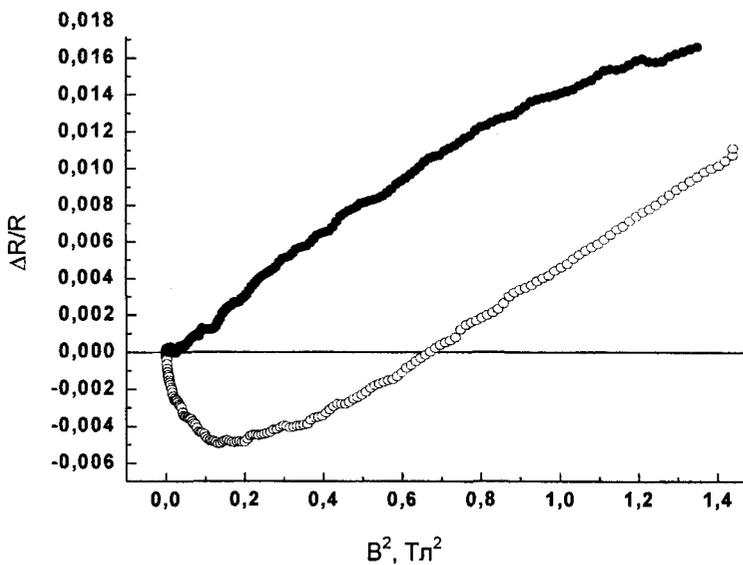


Рис. 3. Магнитолевая зависимость МС контрольного (1) и Si:Gd (2) образцов при  $T = 100$  К

Дальнейшее понижение температуры ведет к уменьшению отрицательной и сильному возрастанию положительной компоненты МС. Так при  $T = 20$  К как в исходных, так и в легированных образцах наблюдается только положительное магнитосопротивление с близкой к линейной магнитолевой зависимостью в области сильных магнитных полей (рис. 4). Так же, как и при комнатной температуре, МС при 20 К в контрольном образце в два раза больше, чем в Si:Gd, а абсолютная величина МС при 20 К более чем на порядок превышает МС при  $T = 300$  К. Известно [9], что линейность магнитолевой зависимости магнитосопротивления обуславливается неоднородностью образца, что отчетливо проявляется при низких температурах. Определенный вклад в линейную зависимость МС от магнитного поля при низких температурах может дать и геометрическая компонента, однако, как отмечалось выше, ее величина в исследуемых образцах не превышала 15 %, в то время как МС увеличивается более чем на порядок.

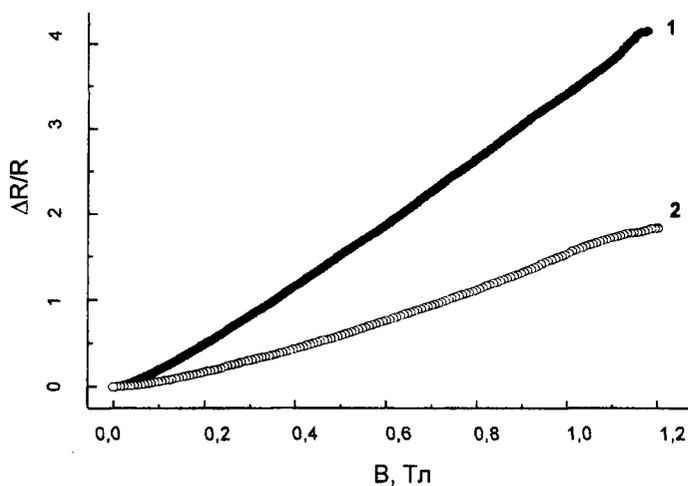


Рис. 4. Магнитополевая зависимость МС контрольного (1) и Si:Gd (2) образцов при  $T = 20$  К

Наблюдавшиеся особенности магнитосопротивления могут быть обусловлены как изменением рассеяния носителей заряда, так и изменением механизма проводимости, например, переходом к прыжковому механизму. Типичные температурные зависимости сопротивления контрольного и легированного Gd образцов (рис. 5) показывают, что в исследованном температурном диапазоне преобладает зонный механизм переноса заряда и введенный в кремний P3Э не проявляет электрической активности, что подтверждает сделанный в [8] вывод об электрической неактивности лантаноидов в кремнии. Рост сопротивления при температурах ниже 30 К обусловлен вымораживанием примесных электронов из зоны проводимости на доноры. Оценка глубины залегания примесного уровня дает величину  $E_d = 40$  мэВ как для исходного, так и для легированного образцов. Эта величина хорошо согласуется с известной величиной энергии ионизации примесного уровня фосфора в кремнии.

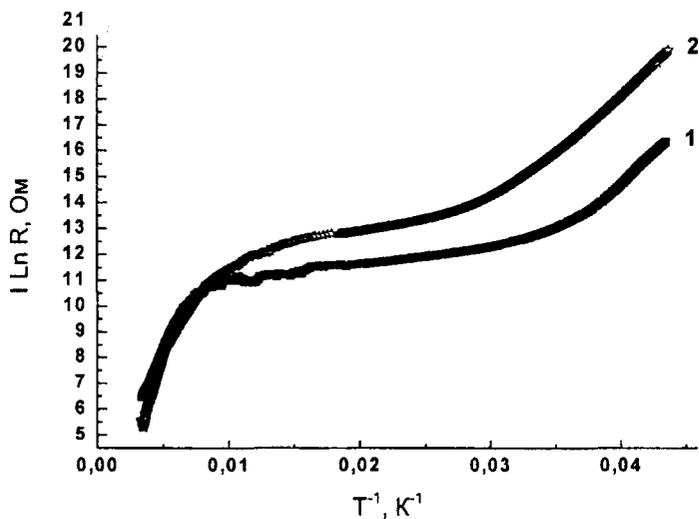


Рис. 5. Температурная зависимость сопротивления контрольного (1) и Si:Gd (2) образцов

Отрицательное МС в Si:P3Э не может вызываться увеличением концентрации свободных носителей заряда в магнитном поле, так как измерение магнитополевой зависимости постоянной Холла в них показало, что она практически не зависит от магнитного поля. Наблюдавшийся незначительный рост постоянной Холла в Si:Gd лишь подтверждает их неоднородность.

Отрицательное магнитосопротивление полупроводников, наблюдаемое в области температур жидкого гелия, обычно интерпретируется в рамках модели [10] и в случае равномерного распределения атомов примеси по кристаллу, оно не зависит от вида легирующей примеси – магнитная или немагнитная. Вместе с тем наблюдаемый в области азотных температур отрицательный магниторезистивный эффект в Si:P3Э обусловлен именно наличием магнитных включений в полупроводниковой матрице, т.е. эффектом, похожим на «гигантский» магниторезистивный эффект. Согласно модели ГМС [1] большое сопротивление образца в отсутствие магнитного поля обусловлено последовательным рассеянием носителей заряда на магнитных кластерах со случайной ориентацией магнитных моментов. Внешнее магнит-

ное поле ориентирует магнитные моменты кластеров по направлению поля, что приводит к уменьшению рассеяния и тем самым сопротивлению образца, т.е. к отрицательному МС.

В рассмотренной модели при увеличении температуры должно наблюдаться уменьшение величины ГМС вследствие возрастания «спинового беспорядка» при рассеянии носителей магнитными кластерами. С другой стороны, уменьшение ГМС может происходить и при уменьшении температуры, если при этом имеет место магнитный фазовый переход в состоянии кластера, т.е. кластер переходит из суперпарамагнитного в антиферромагнитное состояние. В этом случае макроскопический магнитный момент кластера становится равным нулю и, следовательно, компонента отрицательного МС из-за рассеяния носителей на магнитных моментах кластеров также обращается в ноль.

Изучение температурных зависимостей намагниченности кремния с включениями гадолиния показало [5], что на них четко проявляется максимум вблизи температур 26 – 30 К. Наличие этого максимума может быть связано только с присутствием в образцах антиферромагнитно упорядочиваемой фазы. Известно интерметаллическое соединение  $GdSi_2$  [6], в котором антиферромагнитное упорядочение между ионами  $Gd^{3+}$  осуществляется за счет косвенного обменного взаимодействия через электроны проводимости. Температура Нееля в этом соединении  $T_N \sim 27$  К. Учитывая, что температура максимума магнитной восприимчивости и температура перехода в область положительного МС в Si:Gd достаточно хорошо коррелируют с температурой Нееля  $GdSi_2$ , а также то, что проводимость образцов определяется свободными электронами, можно предположить, что отрицательное МС в таких образцах обусловлено рассеянием электронов проводимости на включениях второй фазы, которая по составу близка к соединению  $GdSi_2$ . Следовательно, в Si:Gd уменьшение отрицательной компоненты МС наблюдается не только при повышении температуры, но и при ее понижении из-за потери рассеивающим кластером макроскопического магнитного момента при переходе в антиферромагнитное состояние.

Условия наблюдения «гигантского» МС в исследованных образцах Si:Gd далеки от оптимальных, когда размеры изолированных магнитных кластеров и расстояния между ними порядка длины свободного пробега носителей. На отрицательное МС при зонном механизме переноса заряда накладывается положительное лоренцевское магнитосопротивление, дающее аддитивный вклад в измеряемый магниторезистивный эффект и быстро увеличивающееся с ростом магнитного поля. Последнее не характерно для металлической матрицы, но характерно для полупроводниковой матрицы как не содержащей, так и содержащей магнитные кластеры. Указанные обстоятельства затрудняют анализ МС.

Отметим также, что изменение направления магнитного поля не приводит к гистерезисным явлениям в МС кремния с включениями магнитных кластеров, что характерно для туннельного и гигантского магниторезистивных эффектов. Это свидетельствует о том, что кластеры гадолиния, определяющие появление отрицательного магниторезистивного эффекта, находятся в суперпарамагнитном состоянии.

**Выводы.** Таким образом, введение кластеров Gd в полупроводниковую матрицу кремния приводит к появлению отрицательного магниторезистивного эффекта в области азотных температур, что обусловлено подавлением рассеяния электронов проводимости во внешнем магнитном поле на магнитных кластерах вследствие поляризации магнитных моментов кластеров по направлению магнитного поля. Как увеличение, так и уменьшение температуры приводит к уменьшению отрицательной компоненты МС, что, с одной стороны, вызывается увеличением спинового беспорядка, а с другой, – магнитным фазовым переходом рассеивающих кластеров из суперпарамагнитного в антиферромагнитное состояние.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Giant magnitoresistance in heterogeneous Cu – Co alloys / Berkowitz A.E., Mitchell J.R., Carey M.J. et. al. // *Phys. Rev. Lett.* – 1992. – V. 68, № 25. – P. 3745 – 3748.
2. Rubin S., Holdenried M., Micklitz H. A model system for the GMR in granular systems: Well – defined Co clusters embedded in an Ag matrix // *J. Magn and Magn. Matter.* – 1999. – V. 203. compl. – P. 97 – 99.
3. Holdenried M., Micklitz H. Tunneling magnitoresistance in granular films made of well – defined Co – SiO clusters embedded in an inert – gas matrix // *Eur. Phys. J. B.* – 2000. – V. 13. – P. 205 – 208.
4. Holdenried M., Hackenbroich B., Micklitz H. Systematic studies of tunneling magnitoresistance in granular films made of well – defined Co – SiO clusters // *J. Magn. and Magn. Matter.* – 2001. – V. 231. – P. L13 – L19.
5. Магнитные свойства и взаимодействие примесей в кристаллах Si<Gd> / Андрианов Д.Г., Бочкарев Э.П., Гришин В.П. и др. // *Физика и техника полупроводников.* – 1978. – Т. 12, № 3. – С. 511 – 519.
6. Особенности структуры кремния, легированного редкоземельными элементами / Гусаков В.Е., Петров В.В., Просолович В.С. и др. // *Электронная техника. Сер. Материалы.* – 1989. – № 4. – С. 29 – 32.
7. Особенности структуры кремния, легированного гадолинием / Дранчук С.Н., Карпов Ю.А., Шаховцов В.И., Шиндич В.Л. // *Известия АН СССР. Неорганические материалы.* – 1981. – Т. 17, № 5. – С. 757 – 761.
8. Электрофизические свойства p – Si с примесью гадолиния / Антоненко Р.С., Карпов Ю.А., Шаховцов В.И. и др. // *Физика и техника полупроводников.* – 1973. – Т. 12, № 9. – С. 1707 – 1713.
9. Кучис Е.В. Гальваномагнитные эффекты и методы их исследования. – М.: Радио и связь, 1990. – 264 с.
10. Toyozawa Y. Theory of localized spins and negative magnitoresistance in metallic impurity conduction // *J. Phys. Soc. Japan.* – 1962. – V. 17, № 6. – P. 986 – 1024.