

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
ФИЗИКО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ им. А.Ф. ИОФФЕ
Российской академии наук

на правах рукописи

Крайнов Игорь Вадимович

ОСОБЕННОСТИ ОБМЕННОГО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ
И РЕЛАКСАЦИИ СПИНА В
РАЗБАВЛЕННЫХ МАГНИТНЫХ СИСТЕМАХ

Специальность:

01.04.10 - физика полупроводников

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени

кандидата физико-математических наук

научный руководитель:

доктор физико-математических наук

Н.С. Аверкиев

Санкт-Петербург

2018

Оглавление

Введение	4
1 Спиновая релаксация в магнитных полупроводниках и наноструктурах	9
1.1 Введение	9
1.2 Спиновая релаксация электронов в магнитных квантовых ямах: эффект корреляции спинов магнитных центров	12
1.2.1 Электронная спиновая релаксация в присутствии корреляций Mn	12
1.2.2 РККИ корреляции обусловленные дырками	15
1.2.3 Обсуждение полученных результатов	18
1.2.4 Сравнение с экспериментом	20
1.3 Релаксация спина марганца в ферромагнитном GaMnAs	25
1.3.1 Результаты эксперимента	25
1.3.2 Теория	33
1.3.3 Обсуждение.	36
1.4 Краткие итоги	39
2 Резонансное косвенное обменное взаимодействие в полупроводниковых наноструктурах	40

2.1	Введение	40
2.2	Резонсное косвенное обменное взаимодействие в квантовых ямах с удаленным δ -слоем магнитных примесей	43
2.2.1	Теория	43
2.2.2	Обсуждение	50
2.2.3	Сравнение с экспериментом	51
2.3	Косвенное обменное взаимодействие магнитных адатомов в графене	59
2.3.1	Теория	59
2.3.2	Обсуждение	63
2.3.3	Дополнение	67
2.4	Краткие итоги	71
3	Гигантское магнетосопротивление в углеродных нанотрубках с одиночными магнитными молекулами TbPc₂	72
3.1	Введение	72
3.2	Структура одиночной магнитной молекулы TbPc ₂	76
3.3	Экспериментальные результаты	77
3.4	Теория	81
3.4.1	Резонанс Фано в двухбарьерной структуре	81
3.4.2	Учет спина: расщепление резонансов Фано	86
3.4.3	Кулоновская блокада: учет взаимодействия	89
3.4.4	Взаимодействие между спинами молекул	102
3.4.5	Контактанс и ГМС	104
3.5	Краткие итоги	107
4	Тонкая структура акцептора марганца в арсениде галлия	108

4.1	Введение	108
4.2	Экспериментальные результаты	109
4.3	Теоретическая модель	115
4.4	Обсуждение результатов	117
4.5	Краткие итоги	122
	Заключение	123
	Список литературы	127

Введение

Изучение магнитных материалов является одним из главных направлений современной физики конденсированного состояния. К таким материалам относятся, в частности, магнитные полупроводники, уникальные особенности которых связаны с сочетанием полупроводниковых и магнитных свойств [1, 2, 3]. Для эффективного управления свойствами таких материалов необходимо понять природу их магнитного упорядочения и изучить зависимость их магнитных свойств как от внешних воздействий, так и от межпримесного взаимодействия.

Одним из основных механизмов формирования ферромагнитного порядка в разбавленных магнитных полупроводниках [4] с делокализованными носителями является косвенное обменное взаимодействие, в связи с чем изучение особенностей этого типа взаимодействия в наноструктурах представляется важной задачей.

Другим интересным направлением в области спиновой физики является молекулярная спинтроника [5, 6, 7, 8], которая ставит своей целью изучение способов характеризовать, манипулировать и считывать молекулярные спиновые состояния наносистем вплоть до уровня одной молекулы. Эта цель может быть достигнута при использовании новейших оптических и электрических методов. Дальнейшая миниатюризация устройств и необходимость эффективного взаимодействия органических и неорганических материалов для биомедицинских и нанoeлектронных применений являются движущими силами этого направления [9].

Сказанное выше обуславливает актуальность темы диссертации.

Цель настоящего исследования заключается в теоретическом изучении спиновой релаксации в разбавленных магнитных полупроводниках и построению теории

косвенного обменного взаимодействия в наногетероструктурах.

Научная новизна работы состоит в решении конкретных задач:

1. Построение теории спиновой релаксации электронов в магнитных квантовых ямах с учетом корреляций спинов магнитных примесей.
2. Определение основных механизмов спиновой релаксации $3d^5$ электронов марганца в ферромагнитном (Ga,Mn)As.
3. Обобщение теории косвенного обменного взаимодействия магнитных примесей с учетом наличия у них резонансных локализованных состояний в полупроводниковых наногетероструктурах.
4. Установление микроскопической природы гигантского магнетосопротивления в углеродных нанотрубках с одиночными магнитными молекулами.
5. Уточнение модели нейтрального акцептора марганца в арсениде галлия.

Практическая значимость работы состоит в том, что впервые были учтены корреляции спинов магнитных примесей в расчете времени спиновой релаксации электронов в магнитных квантовых ямах. В ферромагнитном (Ga,Mn)As были установлены основные механизмы спиновой релаксации связанные с дырками. Развита теория резонансного косвенного обменного взаимодействия в магнитных наногетероструктурах. Объяснен эффект гигантского магнетосопротивления в углеродных нанотрубках с магнитными молекулами и предсказано существование нового типа косвенного взаимодействия между ними. Уточнена теоретическая модель акцептора марганца в GaAs.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. В магнитных квантовых ямах при наличии спиновых корреляций магнитных центров уменьшается время спиновой релаксации электронов и появляется его зависимость от температуры.
2. Основные механизмы спиновой релаксации $3d^5$ электронов марганца в ферромагнитном (Ga,Mn)As связаны с флуктуациями спина дырок и их быстрой спиновой релаксацией.

3. Магнитные адатомы с резонансными локализованными состояниями, помещенные на поверхность графена, взаимодействуют антиферромагнитным или ферромагнитным образом в зависимости от положения уровня адатома относительно дираковской точки. Взаимодействие является ферромагнитным, если уровень лежит выше нее, и антиферромагнитным, если ниже.
4. Сильное кулоновское взаимодействие электронов в углеродных нанотрубках и их спин-зависимое резонансное рассеяние на присоединенных магнитных молекулах приводит к эффекту гигантского магнетосопротивления и к новому типу косвенного взаимодействия между магнитными молекулами.

Апробация работы. Результаты работы докладывались на научных семинарах ФТИ им. А.Ф. Иоффе, Казанском ФТИ им. Е.К. Завойского, Российских конференциях по физике полупроводников (Санкт-Петербург, 2013; Звенигород, 2015; Екатеринбург, 2017), «Single dopants» (Санкт-Петербург, 2014), «Международной зимней школе по физике полупроводников» ФТИ им. А.Ф. Иоффе (Зеленогорск, 2013, 2014, 2016), «XXI Уральской международной зимней школе по физике полупроводников» (Екатеринбург, 2016), «International School on Spin-Optronics» (Санкт-Петербург, 2012), «28th International Conference on Defects in Semiconductors» (Espoo, Финляндия, 2015).

Публикации. По результатам исследований, представленных в диссертации, опубликовано 8 работ в реферируемых журналах. Список работ приведен в Заключении.

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и списка литературы. Она содержит 143 страниц текста, включая 37 рисунков. Список цитируемой литературы содержит 137 наименования.

Во Введении обоснована актуальность проведенных исследований, сформулированы цель и научная новизна работы, перечислены основные положения, выносимые на защиту, а также кратко изложено содержание диссертации.

Первая глава посвящена исследованию спиновой релаксации в магнитных полупроводниках. Предложен новый механизм спиновой релаксации электронов в

магнитных квантовых ямах, учитывающий спиновые корреляции в магнитной подсистеме. Расчитано время электронной спиновой релаксации при наличии косвенного обменного взаимодействия типа Рудермана-Киттеля-Касуи-Иосиды (РККИ) между спинами магнитных примесей. Показано, что корреляции приводят к появлению зависимостей от температуры и концентрации примесей обуславливающих косвенный обмен, что отсутствует в стандартном подходе, учитывающем рассеяние электрона на одиночной магнитной примеси. Исследованы основные механизмы спиновой релаксации $3d^5$ электронов марганца в ферромагнитном $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$. Рассчитана скорость их спиновой релаксации как функция температуры включая парамагнитную и ферромагнитную фазу. Выявлено, что основным источником релаксации спина являются дырки и важны их флюктуации и быстрая спиновая релаксация.

Во второй главе диссертации развита теория резонансного косвенного обменного взаимодействия магнитных центров в полупроводниковых гетероструктурах. Показано, что наличие локализованного состояния у магнитной примеси существенно меняет их косвенный обмен по сравнению с теорией РККИ. При выполнении резонансных условий - попадание уровня локализованного состояния в спектр континуума делокализованных состояний осуществляющих обмен, происходит значительное усиление взаимодействия магнитных примесей. В гетероструктурах GaAs с Mn δ -слоем, расположенным в окрестности квантовой ямы $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ исследована зависимость температуры Кюри от глубины квантовой ямы. Температура Кюри состоит из двух вкладов, первый связан с магнетизмом внутри слоя и не зависит от КЯ, второй - косвенное обменное взаимодействие через дырки КЯ. Второй вклад имеет немонотонную особенность в зависимости от глубины КЯ, связанную с резонансным условием косвенного обмена. Расчитан косвенный обмен магнитных атомов расположенных на поверхности графена.

В третьей главе диссертации представлена теоретическая модель объясняющая эффект гигантского магнитосопротивления (эффект спинового клапана) и

кулоновской блокады в углеродных нанотрубках с присоединенными магнитными молекулами TbPc₂. Развитая теория предсказывает дальнедействующее взаимодействие между магнитными молекулами, за счет Кулоновского взаимодействия электронов в нанотрубке и резонансного спин-зависимого рассеяния на молекулах. Продемонстрировано, что это эффективное спин-спиновое взаимодействие (включая его знак) зависит от напряжения затвора и положений молекул.

В четвертой главе диссертации теоретически описана тонкая структура уровней одиночного акцептора марганца A_{Mn}^0 в объемном GaAs при наличии одноосной деформации и внешнего магнитного поля. Сравнение с экспериментальными данными, теоретически рассчитанных переходов между основным состоянием с полным моментом $F = 1$ и первым возбужденным состоянием $F = 2$ позволило установить величину локальных случайных полей действующих на акцептор марганца. Так же было установлено наличие зависимости от внешней деформации константы обменного взаимодействия локализованной дырки и электронов d оболочки марганца и оценена ее величина.

Каждая глава содержит вводный раздел и краткий список основных результатов. В Заключении обобщены основные результаты работы.

Формулы и рисунки в диссертации нумеруются по главам, нумерация литературы единая для всего текста.

Глава 1

Спиновая релаксация в магнитных полупроводниках и наноструктурах

1.1 Введение

Физика неравновесного спина в полупроводниках и полупроводниковых наноструктурах в течение последних десятилетий интенсивно исследовалась как экспериментально, так и теоретически, чему способствовали идеи потенциальных приложений [2, 3].

Хорошо известно, что основным механизмом электронной спиновой релаксации в магнитных квантовых ямах (КЯ) является рассеяние с переворотом спина на магнитных центрах [10, 11, 12, 13, 14].

Исследования температурной зависимости времени спиновой релаксации электронов в магнитных квантовых ямах показывают возрастание времени спиновой релаксации с температурой в режиме низкой концентрации марганца [14], что представляется противоречивым. Увеличение мощности накачки, вызывающей увеличение концентрации носителей заряда, в нулевом магнитном поле приводит к уменьшению времени спиновой релаксации, что также вызывает непонимание.

Расчеты времени спиновой релаксации электронов на основе правила квантовой механики и не позволяют воспроизвести экспериментальные результаты даже в простейшем случае электронов зоны проводимости, заключенных в квантовую яму CdMnTe. Действительно, рассчитанные времена спиновой релаксации

систематически примерно в пять раз дольше, чем экспериментальные значения [13, 14]. Более сложные теории, основанные на квантовых кинетических уравнениях [15, 16] позволяют рассчитывать зависимость от магнитного поля как продольного, так и поперечного времени релаксации спина электрона. Однако эти значения не отличаются в нулевом магнитном поле от значений, полученных в рамках подхода золотого правила Ферми.

В первой части этой главы будет предложен новый механизм спиновой релаксации электронов в магнитных КЯ (на примере n -легированных CdMnTe КЯ), учитывающий спиновые корреляции в магнитной подсистеме.

Во второй части этой главы будет исследован разбавленный магнитный полупроводник (РМП) (Ga,Mn)As. Этот материал, с ферромагнетизмом, обусловленным дырками [4] представляет собой идеальный материал для изучения сильно коррелированных неупорядоченных спиновых систем. Важные характеристики данного материала, такие как спиновая релаксация $3d^5$ электронов марганца и его g -фактор не вполне изучены, хотя существует множество способов экспериментально исследовать магнитные возбуждения в данной системе. В первую очередь ферромагнитный резонанс (ФМР) [17, 18], сверхбыстрый магнето-оптический Керр эффект (МОКЭ) [19, 20, 21], пикосекундные импульсы деформации [22], комбинационное рассеяние с переворотом спина (КРПС) [23].

Спиновая динамика в ферромагнитном (Ga,Mn)As была изучена экспериментально методом ФМР и оказалось, что эффективный g_{eff} -фактор, характеризующий связанную систему, состоящую из спинов дырок и марганцев, равен $g_{eff} = 1.92 \pm 0.04$ (см. [24]) и $g_{eff} = 1.91$ (см. [25]). Измеренные величины g_{eff} находятся в хорошем согласии с теоретическим предсказанием - $g_{eff} = 1.90$ (см. [26]). Из анализа данных [27, 28, 29] МОКЭ время поперечной спиновой релаксации было оценено $\tau_{Mn} \sim 300 \div 400$ пс. Однако, соответствующая теория отсутствует и основные механизмы спиновой релаксации марганца в данной системе не понятны.

Другим хорошим экспериментальным методом для исследования является

комбинационное рассеяние с переворотом спина. Метод был применен к образцам с одиночными центрами марганца для изучения их тонкой структуры [30] и так же к ферромагнитному $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ для прямого измерения эффективного g -фактора марганца, поперечного времени спиновой релаксации, его температурной и магнито-полевой зависимости, о чем пойдет речь в настоящей главе.

Во второй части данной главы будет разработана аналитическая модель описывающая динамику магнитных подсистем марганца и делокализованных дырок в GaMnAs . Развита модель позволила определить основные механизмы спиновой релаксации марганца, произведено сравнение с экспериментом по комбинационному рассеянию с переворотом спина, показывающее удовлетворительное согласие.

1.2 Спиновая релаксация электронов в магнитных квантовых ямах: эффект корреляции спинов магнитных центров

В данном разделе изучается влияние спин-спиновых корреляций магнитных центров на релаксацию спина электронов [31, 32] в квантовых ямах. Эти корреляции возникают из-за делокализованных носителей по механизму косвенного обменного взаимодействия Рудермана-Киттеля-Касуя-Йосиды (РККИ), и приводят к новому вкладу в релаксацию спина носителей, которая не учитывается при расчете золотым правилом Ферми. РККИ-взаимодействие через дырки в разбавленных магнитных полупроводниках приводит к ферромагнетизму и, как известно, сильно зависит от температуры [33]. Уменьшение температуры приводит к нарастанию корреляций даже выше ферромагнитного перехода. Будет показано, что эти корреляции ответственны за температурную и концентрационную зависимость электронной спиновой релаксации.

1.2.1 Электронная спиновая релаксация в присутствии корреляций Mn

Гамильтониан, описывающий обменное взаимодействие между электроном и марганцем, имеет следующий вид

$$\hat{V} = \alpha \hat{\mathbf{S}} \cdot \hat{\mathbf{M}}(\mathbf{r}), \quad \hat{\mathbf{M}}(\mathbf{r}) = \sum_i \delta(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}) \hat{\mathbf{J}}_i, \quad (1.1)$$

где $\hat{\mathbf{S}}$ и $\hat{\mathbf{J}}_i$ - спиновые операторы электрона и марганца, \mathbf{r}_i - двумерные координаты марганца. Уравнение Фон Неймана, описывающее временную эволюцию матрицы электронной плотности, может быть записано в базисе плоских волн как

$$\frac{\partial \hat{\rho}_{kk'}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} (E_k - E_{k'}) \hat{\rho}_{kk'} - \frac{i}{\hbar} \sum_p (\hat{V}_{kp} \hat{\rho}_{pk'} - \hat{\rho}_{kp} \hat{V}_{pk'}). \quad (1.2)$$

Мы будем предполагать типичный РМП, где концентрация марганца n_{Mn} много больше концентрации электронов n_e . Поэтому можно считать, что спины марганца являются статическими. Следует отметить, что написанное уравнение (1.2) не

содержит кулоновского потенциала примесных центров марганца, что оправданно для II-VI КЯ в которых Mn является изовалентной примесью и привносит в систему только спин, согласно (1.1). Свободные электроны образуются в результате дополнительного модульного легирования донорами. В случае малого возмущения недиагональные матричные элементы матрицы плотности много меньше диагональных матричных элементов. Следовательно, можно решить уравнение (1.2) на внедиагональные компоненты пренебрегая слагаемыми $V_{kp}\rho_{pk'}$, и затем подставить результат в уравнение на диагональные элементы. Фурье образ полученного уравнения:

$$-i\omega\hat{\rho}_{kk}(\omega) + \frac{i}{\hbar} [\hat{V}_{kk}, \hat{\rho}_{kk}] = -\frac{2\pi}{\hbar} \int d\mathbf{p} \delta(E_p - E_k) \cdot \left(\frac{\hat{V}_{kp}\hat{V}_{pk}\hat{\rho}_{kk}(\omega) + \hat{\rho}_{kk}(\omega)\hat{V}_{kp}\hat{V}_{pk}}{2} - \hat{V}_{kp}\hat{\rho}_{pp}(\omega)\hat{V}_{pk} \right). \quad (1.3)$$

Выполним усреднение по пространственному и спиновому распределению марганцев в уравнении (1.3), предполагая, что среднее значение спина марганца равно нулю (нулевое магнитное поле). При этом предположении линейный по α вклад исчезает и коррелятор обменного взаимодействия равен

$$\langle \hat{V}_{kp}\hat{V}_{pk} \rangle = \alpha^2 \hat{S}_i \hat{S}_j \int d\mathbf{r} e^{i(\mathbf{p}-\mathbf{k})\mathbf{r}} \langle \hat{M}_i(0)\hat{M}_j(\mathbf{r}) \rangle. \quad (1.4)$$

Спин-спиновый коррелятор марганца $G_{ij}(\mathbf{r}) \equiv \langle \hat{M}_i(0)\hat{M}_j(\mathbf{r}) \rangle$ в этом выражении предполагается трансляционно инвариантным, т.е. зависящем только от разности пространственных координат. Для электронного спина $\mathbf{S}_{\mathbf{k}} = \text{Tr}(\hat{\mathbf{S}}\rho_{kk})$ можно получить следующее динамическое уравнение

$$\frac{\partial \mathbf{S}_{\mathbf{k}}}{\partial t} = -\hat{\Gamma}(\mathbf{k})\mathbf{S}_{\mathbf{k}}, \quad (1.5)$$

$$\hat{\Gamma}(\mathbf{k}) = \frac{\alpha^2 m_e}{2\hbar^3} \int d\mathbf{r} J_0(kr) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} \left[\hat{\Gamma} \text{Tr} \{ \hat{G}(\mathbf{r}) \} - \frac{\hat{G}(\mathbf{r}) + \hat{G}^T(\mathbf{r})}{2} \right], \quad (1.6)$$

где верхний индекс T обозначает транспонирование, m_e - эффективная масса электронов, и J_0 функция Бесселя первого рода.

В случае нескоррелированных спинов марганца коррелятор (1.4) равен

$$G_0^{ij}(\mathbf{r}) = \left\langle \sum_{nm} \hat{J}_n^i \delta(\mathbf{r}_n) \hat{J}_m^j \delta(\mathbf{r}_m - \mathbf{r}) \right\rangle = \delta_{ij} \delta(\mathbf{r}) \frac{J(J+1)n_{Mn}}{3}. \quad (1.7)$$

Подставляя этот коррелятор в уравнение (1.6), получим хорошо известный результат для скорости релаксации электронного спина из-за обменного взаимодействия с магнитными примесями [15]

$$\gamma_0 = \frac{\alpha^2 J(J+1)n_{Mn}m_e}{3\hbar^3}, \quad (1.8)$$

который не зависит как от электронного импульса, так и от концентрации электронов.

Теперь учтем корреляции между спинами марганца. Взаимодействие между спинами марганца можно записать в виде

$$\hat{V}_{JJ} = \sum_{n \neq m} \hat{J}_n^i B_{ij}(\mathbf{r}_n - \mathbf{r}_m) \hat{J}_m^j, \quad (1.9)$$

где $B_{ij}(r_n - r_m)$ описывает половину энергии взаимодействия Mn-Mn. Концентрация марганца намного больше концентрации электронов, и в области с характерным размером порядка длины волны электрона имеется большое количество магнитных центров. Таким образом, можно заменить дискретное распределение Mn непрерывным распределением спина Mn и рассматривать $M_i(\mathbf{r})$ как классическое поле

$$V_{JJ}(\{\mathbf{M}\}) = \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' M_i(\mathbf{r}) B_{ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') M_j(\mathbf{r}'). \quad (1.10)$$

Кроме того, мы предполагаем гауссовое распределение спина Mn. Полученный коррелятор имеет вид

$$\begin{aligned} \hat{G}(\mathbf{r}) &= \frac{\int D[\mathbf{M}] \mathbf{M}(0) \mathbf{M}^T(\mathbf{r}) e^{-A \int \mathbf{M}^2 dS} e^{-\frac{V_{JJ}(\{\mathbf{M}\})}{T}}}{\int D[\mathbf{M}] e^{-A \int \mathbf{M}^2 dS} e^{-\frac{V_{JJ}(\{\mathbf{M}\})}{T}}} \\ &= \hat{1} \frac{\delta(\mathbf{r})}{A} - \frac{1}{A} \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^2} e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} \hat{B}(\mathbf{k}) \left[\hat{1} A T + \hat{B}(\mathbf{k}) \right]^{-1} \equiv \hat{G}_0 + \hat{G}_c, \end{aligned} \quad (1.11)$$

где T - температура решетки, а функциональный интеграл $\int D[M]$ берется по всем возможным магнитным конфигурациям M . В дальнейшем мы опускаем аргумент корреляционной функции (\mathbf{r}) . Константа нормировки A определяется из требования о необходимости восстановления коррелятора в уравнении (1.7) в отсутствие взаимодействия

$$\hat{G} \xrightarrow{B(k)=0} \hat{G}_0 = \hat{I} \frac{\delta(\mathbf{r})}{A}, \quad A = \frac{3}{J(J+1)n_{Mn}}. \quad (1.12)$$

Подставляя (1.11, 1.12) в (1.6), получаем скорость релаксации спина электрона, вызванную рассеянием с переворотом спина на коррелированных спинах марганца

$$\hat{\Gamma}(\mathbf{k}) = \gamma_0 \left(\hat{I} + \hat{\mathcal{G}}(\mathbf{k}) \right), \quad (1.13)$$

$$\hat{\mathcal{G}}(\mathbf{k}) = \frac{A}{2} \int d\mathbf{r} J_0(kr) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} \left[\hat{I} \text{Tr} \left\{ \hat{G}_c \right\} - \hat{G}_c \right]. \quad (1.14)$$

Заметим, что скорость релаксации спина электрона зависит от его волнового вектора, в отличие от предсказания теории, основанной на расчетах в рамках золотого правила Ферми.

1.2.2 РККИ корреляции обусловленные дырками

Применим результаты предыдущего раздела к корреляциям магнитных примесей обусловленными дырками, т.е. посредством РККИ взаимодействия [31, 32]. Считается, что взаимодействие между магнитными ионами изотропно в пространстве, а структура спинового гамильтониана имеет одноосную асимметрию:

$$\hat{V}_{JJ} = \sum_{n \neq m} B_{\perp}(r_{nm}) \left(\hat{J}_x^n \hat{J}_x^m + \hat{J}_y^n \hat{J}_y^m \right) + B_{\parallel}(r_{nm}) \hat{J}_z^n \hat{J}_z^m. \quad (1.15)$$

Мы фокусируемся на z -компоненте электронной спиновой релаксации, которая зависит только от $B_{\perp}(r)$, поэтому мы сохраняем только первый член уравнения 1.15.

Это взаимодействие характеризуется силой B^* и его пространственным радиусом r_i

$$B^* = - \int d\mathbf{r} B_{\perp}(r), \quad r_i^2 = \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial k^2} \left(\frac{B_{\perp}(k=0)}{B_{\perp}(k)} \right) \Big|_{k=0}. \quad (1.16)$$

Где мы определили B^* так, что $B^* > 0$ для учета ферромагнитного характера взаимодействия РККИ на коротком расстоянии, менее Фермиевской длины волны, а r_i можно отождествить с длиной когерентности волновой функции дырок, равной $\frac{1}{r_i} \sim \frac{1}{\lambda_T} + \frac{1}{l_p}$, где l_p - длина свободного пробега дырок, а $\lambda_T = h/\sqrt{2m_h k_B T}$ - тепловая длина. Взаимодействие РККИ между магнитными ионами в структурах с КЯ обсуждалось в [32] для вырожденных носителей. Чтобы учесть температурную зависимость B^* , нужно использовать более общую формулу:

$$B^*(r) = \frac{\beta^2 m_h}{4\pi \hbar^2} \int_0^\infty dk k J_0(kr) N_0(kr) \frac{1}{1 + e^{\frac{E_k - \mu(T)}{T}}}, \quad (1.17)$$

$$\mu(T) = T \ln \left(e^{\frac{T_F}{T}} - 1 \right),$$

где J_0, N_0 - соответственно функции Бесселя и Неймана первого и второго рода, $\mu(T)$ - химический потенциал носителей, ответственных за взаимодействие РККИ. Чтобы получить силу взаимодействия B^* , необходимо интегрировать это выражение по пространственным координатам:

$$B^*(n, T) = \frac{\beta^2 m_h}{4\pi \hbar^2} F \left(\frac{T}{T_F} \right), \quad (1.18)$$

$$F \left(\frac{T}{T_F} \right) = -2\pi \int_0^\infty dq q \int_0^\infty \frac{dx x J_0(qx) N_0(qx)}{1 + e^{\frac{q^2 T_F}{2\pi T} - \frac{\mu(T)}{T}}}, \quad (1.19)$$

где $T_F = \pi \hbar^2 n_h / m_h$ температура Ферми. Температурная зависимость функции F показана на Рис. 1.1.

В предельном случае вырожденного (невырожденного) дырочного газа $F(t) \rightarrow 1$ ($F(t) \rightarrow 1/t$), получим:

$$\text{Вырожденный газ: } B^*(n, T) \sim \frac{\beta^2 m_h}{4\pi \hbar^2}, \quad (1.20)$$

$$\text{Не вырожденный газ: } B^*(n, T) \sim \frac{\beta^2 n_h}{4T}, \quad (1.21)$$

где m_h эффективная масса дырок, n_h - концентрация дырок.

Чтобы получить простое аналитическое выражение для скорости электронной спиновой релаксации, воспользуемся следующей аппроксимацией

$$B_\perp(r) = -\frac{B^*}{2\pi r_i^2} K_0 \left(\frac{r}{r_i} \right), \quad (1.22)$$

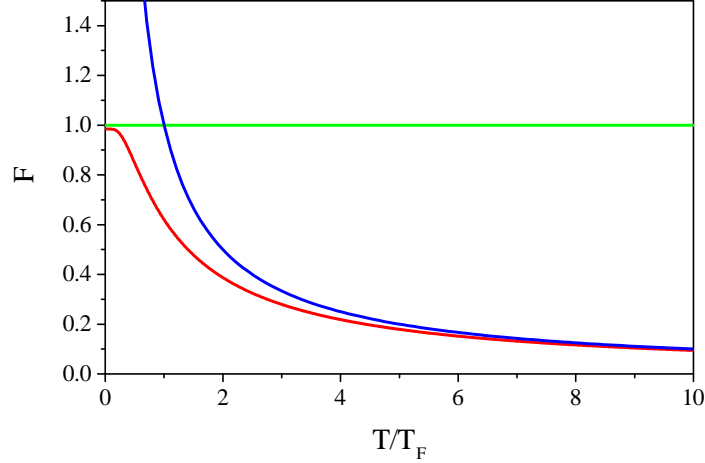


Рис. 1.1: Зависимость функции F (см. текст) от температуры T/T_F (красная линия). Зеленая линия соответствует Больцмановскому пределу $F \rightarrow T_F/T$ (для $T \gg T_F$), синяя линия соответствует пределу Ферми-Дирака $F \rightarrow 1$ (для $T \ll T_F$).

где K_0 - модифицированная функция Бесселя второго рода. Эта функция имеет ожидаемое асимптотическое поведение для взаимодействия РККИ как $B_{\perp} \sim \ln(r)$, $r \rightarrow 0$ и $B_{\perp} \sim e^{-r/r_i}$, $r \rightarrow \infty$. Подставляя (1.22) в выражение (1.11) и (1.14), получаем корреляционную функцию в плоскости

$$G_c = \frac{B^*}{2\pi r_i^2 A^2 T} K_0\left(\frac{r}{r_c}\right), \quad r_c = r_i \sqrt{\frac{T}{T - B^*/A}}, \quad (1.23)$$

и скорость спиновой релаксации электронов

$$\Gamma_z(k) = \gamma_0 \left(1 + \frac{B^*/A}{T - B^*/A} \frac{1}{\sqrt{1 + (2kr_c)^2}} \right). \quad (1.24)$$

Мы можем выразить это выражение через температуру Кюри T_C , то есть температуру, при которой корреляционная длина r_c в выражении (1.23) расходится.

$$T_C - \frac{B^*(n, T_C)}{A} = 0. \quad (1.25)$$

Для $T \ll T_F$ дырочный газ вырожден. Можно получить:

$$\Gamma_z(k) = \gamma_0 \left(1 + \frac{T_C}{(T - T_C) \sqrt{1 + (2kr_c)^2}} \right), \quad (1.26)$$

$$T_C^{FD} \sim \frac{\beta^2 m_h J(J+1) n_{Mn}}{12\pi \hbar^2}, \quad r_c \sim \left(\frac{1}{\lambda_T} + \frac{1}{l_p} \right)^{-1} \sqrt{\frac{T}{T - T_C}}, \quad (1.27)$$

в другом случае $T \gg T_F$ дырки имеют Больцмановское распределение:

$$\Gamma_z(k) = \gamma_0 \left(1 + \frac{T_C^2}{(T^2 - T_C^2)\sqrt{1 + (2kr_c)^2}} \right), \quad (1.28)$$

$$T_C^B \sim \sqrt{\frac{\beta^2 n_h J(J+1) n_{Mn}}{12}}, \quad r_c \sim \left(\frac{1}{\lambda_T} + \frac{1}{l_p} \right)^{-1} \sqrt{\frac{T^2}{T^2 - T_C^2}}. \quad (1.29)$$

Скорость релаксации, определяемая выражением (1.26, 1.28) включает в себя два члена: спин-зависимое рассеяние γ_0 , являющееся результатом золотого правила Ферми, и второе слагаемое γ_c , соответствующее релаксации на коррелированных Mn. Последнее можно понять как результат спиновой диффузии на коррелированных областях с характерным размером r_c . Действительно, электрон проходит через такие области в течение среднего времени $\tau_{fl} = r_c/v_e$, где v_e - скорость электронов (баллистический режим, т.е. $r_c \ll l_p^e$, где l_p^e - длина свободного пробега электронов). В этих коррелированных областях среднее значение магнитного момента Mn отлично от нуля. В качестве примера, в случае распределения Больцмана его порядок величины задается квадратным корнем из префактора в выражении (1.23): $M \sim \sqrt{J^2 n_{Mn} T_C^2 / (\lambda_T^h T)^2}$. Итак, при прохождении этой области электронный спин вращается на угол $\delta\varphi = \omega_{fl} \tau_{fl} \ll 1$. Используя $\omega_{fl} \sim \frac{\alpha}{\hbar} M$, получаем $\delta\varphi = \sqrt{\hbar \gamma_0 / E_F^e T_C} / \sqrt{T - T_C}$. Для температур, не слишком близких к T_C , $\delta\varphi \ll 1$, так что коэффициент диффузии спина электронов равен $D_\varphi \sim \omega_{fl}^2 \tau_{fl}$. Таким образом, этот вклад в скорость релаксации электронов $1/\tau'_s$ можно получить из условия $D_\varphi \tau'_s = 1$

$$\frac{1}{\tau'_s} \approx \omega_{fl}^2 \tau_{fl}, \quad (1.30)$$

что дает второе слагаемое в (1.28).

1.2.3 Обсуждение полученных результатов

Развитая теория в равной степени относится к двум различным экспериментальным ситуациям. Во-первых, к n -легированным КЯ, в режиме для непрерывного

оптического возбуждения, где спиновые корреляции Mn индуцируются фотовозбужденными дырками. Эти корреляции влияют на релаксацию спина резидентных электронов. Во-вторых, к p -легированным КЯ, где резидентные дырки обеспечивают спиновые корреляции марганца. Эти корреляции влияют на спиновую релаксацию фотовозбужденных электронов. Эти два случая описываются одним и тем же набором уравнений (1.24 - 1.25), которые сводятся либо к уравнениям (1.28 - 1.29), когда $T \gg T_F$ или к уравнениям (1.26 - 1.27) при $T \ll T_F$. Кроме того, скорость релаксации электронного спина должна оцениваться либо на тепловом волновом векторе (электронном больцмановском распределении), либо на волновом векторе Ферми (электронное распределение Ферми-Дирака).

Основные результаты теории показаны на рис. 1.2, где показано цветом усиление спиновой релаксации $\Gamma_z(k)/\gamma_0$, вычисленного на плоскости (n_h, T) для $T > T_C$ и для двух разных электронных распределений: в случае невырожденного электронного газа (рис. 1.2 (а)) $\Gamma_z(k)$ оценивается на тепловом волновом векторе $k = k_T$; в случае вырожденного газа электронов (рис. 1.2 (б)), $\Gamma_z(k)$ оценивается на волновом векторе Ферми $k = k_F = \sqrt{2\pi n_e}$. Для расчета мы предполагаем короткодействующий механизм рассеяния, в котором время рассеяния постоянное ($\tau_p = 140$ фс, соответствующее подвижности дырок $\mu_h = 1000$ В см⁻²с⁻¹).

Развитая теория спиновой релаксации на скоррелированных магнитных примесях имеет аналогию с хорошо известным явлением критической опалесценции. Действительно, усиление рассеяния света в окрестности перехода газа к жидкости происходит из-за усиления флуктуации плотности в этом критическом режиме.

В спиновой системе РПМ роль света играет спин электрона или дырки, а усиленное спиновое рассеяние связано с критическими спиновыми флуктуациями в окрестности парамагнитного и ферромагнитного перехода вместо флуктуаций плотности.

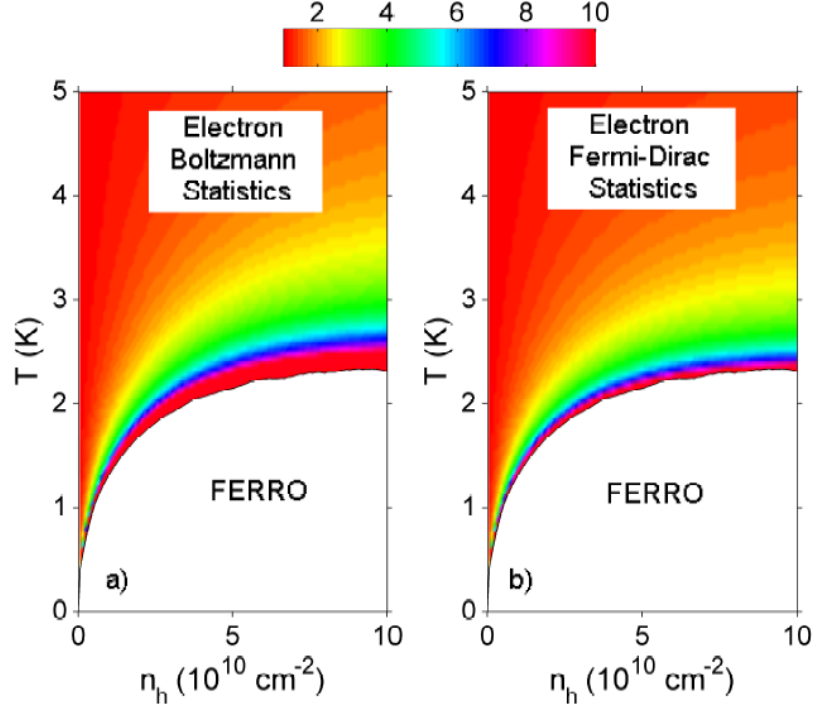


Рис. 1.2: Карта усиления спиновой релаксации $\Gamma_z(k)/\gamma_0$ ($m_h = 0.25m_0$, $m_e = 0.11m_0$, $\beta = 0.012$ эВ нм², $n_{Mn} = 1.8 \times 10^{14} \text{ см}^{-2}$, и m_0 масса свободного электрона). Белая область соответствует ферромагнитной фазе, где развитая теория не применима. (а) Больцмановское распределение электронов, и (b) распределение Ферми-Дирака ($n_e = 2 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$).

1.2.4 Сравнение с экспериментом

Вышеприведенная теория довольно естественным образом применима к спиновой релаксации фотовозбужденных электронов в разбавленных магнитных квантовых ямах р-типа. Теория была разработана для строго двумерной системы. Чтобы применить его к реальным КЯ с конечной шириной L , нужно заменить α и β на α/L и β/L соответственно, а n_{Mn} на $n_{Mn}L$. К сожалению, экспериментальные данные очень скудны [13] и не позволяют проверить теорию. С другой стороны, существуют более систематические измерения электронной спиновой релаксации в нелегированных или n -легированных КЯ [11, 14]. В этом случае можно ожидать влияния фотовозбужденных дырок на релаксацию электронного спина. Мы фокусируемся на спиновой релаксации в отсутствие внешнего магнитного поля. В

этом случае время вычисленной электронной спиновой релаксации $\tau_s^e = \Gamma_z(k)^{-1}$ можно отождествить с измеренным T_{2e}^* .

Времена релаксации электронного спина были измерены с помощью экспериментов накачка-зондирование по Керровскому вращению. Важным параметром является соотношение времен релаксации спина марганца T_1^{Mn} и периода повторения импульсов T_p , определяющее будут ли влиять спиновые корреляции Mn на релаксацию спина электронов. Если $T_1^{Mn} \gg T_p$ спиновые корреляции будут устанавливаться как при непрерывной накачке, возбуждающем ту же среднюю мощность. Напротив, если $T_1^{Mn} \ll T_p$ спиновые корреляции, как ожидается, не будут важны.

Обе ситуации были исследованы экспериментально [11, 14]. В работе [11] образец состоял из КЯ ZnSe, содержащей несколько дельта слоев MnSe, что приводило к относительно большим средним концентрациям Mn, коротким $T_1^{Mn} \leq 1$ нс и очень короткой релаксации спина электрона время ~ 1 пс. Кроме того, $T_p = 0.5$ мкс намного больше T_1^{Mn} , и кумулятивный эффект отсутствует. Маловероятно, что Mn корреляции влияют на релаксацию электронов в этом случае. В работе [14] образцы состояли из CdMnTe КЯ с модульным легированием n-типа с гораздо более низкой концентрацией Mn. Период повторения лазерного импульса составлял $T_p = 12$ нс и $T_1^{Mn} \sim 10$ нс, так что корреляции будут несколько слабее, чем при непрерывной накачке. Кроме того, в этих образцах уровень легирования был достаточно высоким, что подавляет экситонные эффекты из-за экранирования, тем самым позволяя исследовать релаксацию спина электрона, на которую не влияет связывание в экситон. Так же время рекомбинации $\tau_r \gtrsim \tau_s^e$ превосходит время спиновой релаксации. В этих условиях рассчитанный τ_s^e можно непосредственно сравнить с экспериментальным значением [34].

Рисунок 1.3 (а) показывает, как вычисленная зависимость частоты спиновой релаксации от мощности оптической накачки сравнивается с данными для образцов А и В, взятыми из [14] (Образец А: $n_e = 3.4 \times 10^{11}$ см⁻², атомная доля марганца

$x = 0,0021$, ширина КЯ $L = 30$ нм; Образец В: $n_e = 1.9 \times 10^{11}$ см $^{-2}$, $x = 0.0007$, $L = 30$ нм). Для этих двух образцов температуры Ферми соответственно 85 и 47 К. Следовательно, при температурах $T < 15$ К, исследованных в работе [14], электронный газ вырожден. Корреляции Mn-Mn индуцируются фотовозбужденными дырами в этих n -допированных образцах. Мы вычисляем $\Gamma_z(k_F)$ с использованием уравнения (1.24) где спиновые корреляции марганца, вызваны невырожденным дырочным газом (выражение 1.21), или используя общее выражение (сплошные и пунктирные линии, соответственно). Заметим, что, поскольку дырки являются фотовозбужденными, они могут иметь температуру выше решетки. В отсутствие экспериментальных данных о подвижности дырок в CdMnTe КЯ мы использовали τ_p как подгоночный параметр. Увеличение наблюдаемой скорости релаксации спина хорошо воспроизводится при расчете, если принять невырожденный дырочный газ, а для $\tau_p = 0.5$ пс (0.1 пс) для образца А (образец В). Однако для плотностей дырок, оцененных по экспериментальным условиям, следует использовать общее выражение (1.18), поскольку дырочный газ становится вырожденным по мере увеличения мощности. В этих условиях изменение скорости релаксации становится очень слабым. Следует заметить, что экспериментально эффект тоже не очень выражен, так что согласие можно считать разумным (заметим, что абсолютное значение τ_s^e было масштабировано множителем $f \sim 5$, чтобы учесть факт, что измеренное время релаксации систематически короче расчетного значения [13]).

Рисунок 1.3 (b) показывает рассчитанные и измеренные зависимости температур скорости спиновой релаксации. Экспериментальные данные соответствуют образцу А из работы [14]. Расчет прогнозирует уменьшение скорости релаксации с повышением температуры, как это наблюдается, хотя и при более низкой температуре. Ясно, что теория не способна количественно воспроизвести наблюдаемую температурную зависимость. Нужно предположить, что другой механизм отвечает за наблюдаемое уменьшение скорости релаксации. Более убедительным тестом теории было бы сравнение с температурной зависимостью релаксации электронов

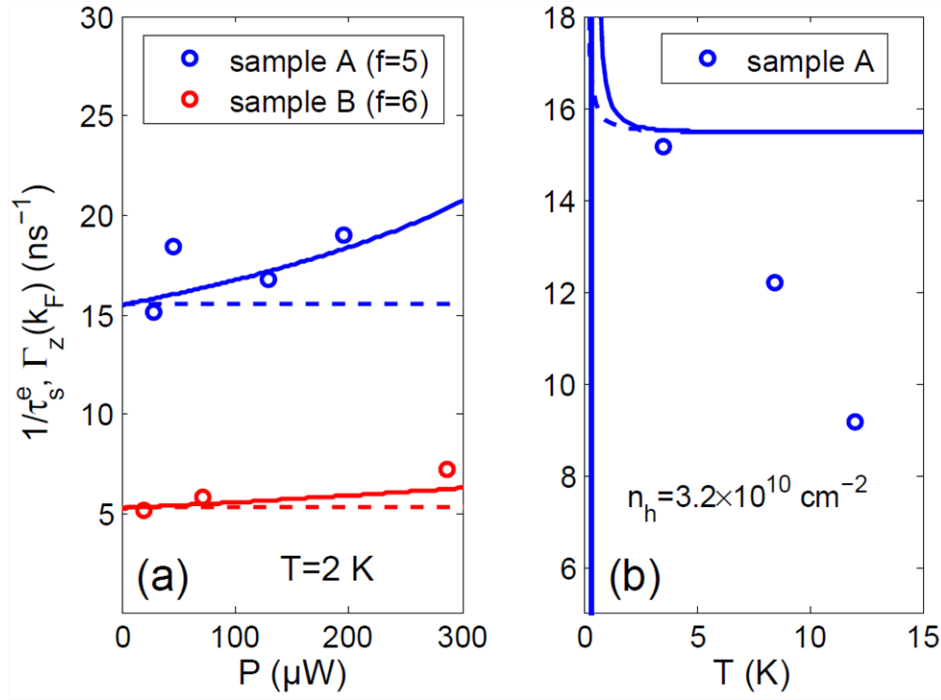


Рис. 1.3: Сравнение расчетных (линий) и измеренных (круги) скоростей релаксации электронного спина. Сплошные линии вычисляются с учетом корреляций Mn-Mn, индуцированных фотовозбужденными дырками, предполагая либо бoльцмановскую статистику дырок (формула (1.21) - сплошные линии), либо статистика Ферми-Дирака (формула (1.18) - пунктирные линии). Чтобы соответствовать экспериментальным значениям (круги из [14]), вычисленный γ_0 (выражение (1.8)) должен был быть умножен на поправочный коэффициент f . (a): Зависимость от мощности накачки скорости релаксации электронного спина для образцов А и В. (b): Температурная зависимость для образца А.

или дырок в p -легированных квантовых ямах, но систематические измерения в этом случае отсутствуют [13].

1.3 Релаксация спина марганца в ферромагнитном GaMnAs

В данном разделе представлена теория релаксации спина $3d^5$ электронов марганца и перенормировки g -фактора в магнитном полупроводнике GaMnAs. Произведено сравнение с экспериментом по комбинационному рассеянию с переворотом спина (КРПС). Продемонстрировано, что КРПС является эффективным инструментом для изучения обменного взаимодействия в РМП на основе соединений II - VI [35, 36, 37]. Этот метод был успешно использован для изучения обменно индуцированного спинового расщепления как связанных, так и свободных носителей в GaAs с одиночными центрами марганца [38] и (Ga,Mn)As РМП [39]. В этой методике сдвиг линии КРПС предоставляет информацию о g -факторе ионов марганца, модифицированном обменным взаимодействием с дырками валентной зоны GaAs, в то время как ширина линии КРПС напрямую связана с временем поперечной спиновой релаксации ионов Mn. Эффективный g -фактор марганца уменьшается примерно на 5 % от его значения в парамагнитной фазе ($g = 2.01$), а ширина линии КРПС почти нечувствительна к температуре ниже температуры Кюри T_C , однако показывает линейный рост при температурах выше T_C . Изучение влияния фазы (парамагнитной и ферромагнитной) на ширину и сдвиг линии КРПС позволили определить основные механизмы дефазировки спина марганца. Развита аналитическая модель базируется на теории среднего поля и описывает неупорядоченный (Ga,Mn)As как две магнитные сильно коррелированные подсистемы. Эта модель хорошо описывает модификацию g -фактора и время жизни спина марганца в (Ga,Mn)As во всем температурном диапазоне, охватывающем ферромагнитное и парамагнитное состояние.

1.3.1 Результаты эксперимента

Представленные эксперименты были выполнены в ФТИ им. А.Ф. Иоффе В.Ф. Сапегой.

В эксперименте использовались пленки (Ga,Mn)As толщиной 500 нм. Исследуемые образцы содержат $x = 0,01$ % (FM1), $x = 0,043$ % (FM2) атомных долей марганца. Кроме того, использовался образец с одиночными центрами Mn ($3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) в GaAs в качестве эталонного, образец R.

Измерения намагниченности по средствам сверхпроводящего квантового интерферометра показало ферромагнитное поведение образцов FM1 и FM2 с температурами Кюри $T_C = 35$ К и 55 К и намагниченностями насыщения $M_S = 5$ ему/см³ и $M_S = 21$ ему/см³ соответственно. На рис. 1.4 показана температурная зависимость намагниченности для образца FM2, измеренная в нулевом ($B = 0$) магнитном поле (красные символы) и при $B = 5$ Т (синие символы).

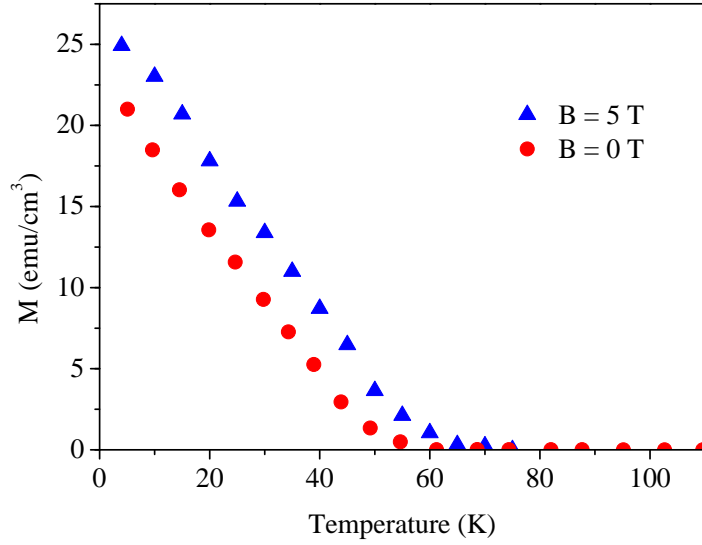


Рис. 1.4: Температурная зависимость намагниченности для $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ при $x = 4.3$ % в магнитном поле $B = 0$ Т - красные круги и $B = 5$ Т - синие треугольники.

Для описания поляризационных свойств линии КРПС в конфигурации Фарадея используется обозначение $x(\sigma^\eta, \sigma^\lambda)\bar{x}$, где \bar{x} и x перпендикулярны плоскости образца yz и $\eta = \pm$, $\lambda = \pm$, обозначает круговую поляризацию возбуждающего σ^η и σ^λ рассеянного света. Геометрия Фойгта соответствует обозначению $x(\sigma, \pi)\bar{x}$, с \bar{x} и x , перпендикулярным плоскости образца, и магнитным полем B , направленным вдоль оси z , а σ , π , обозначают линейные поляризации возбуждающего (σ)

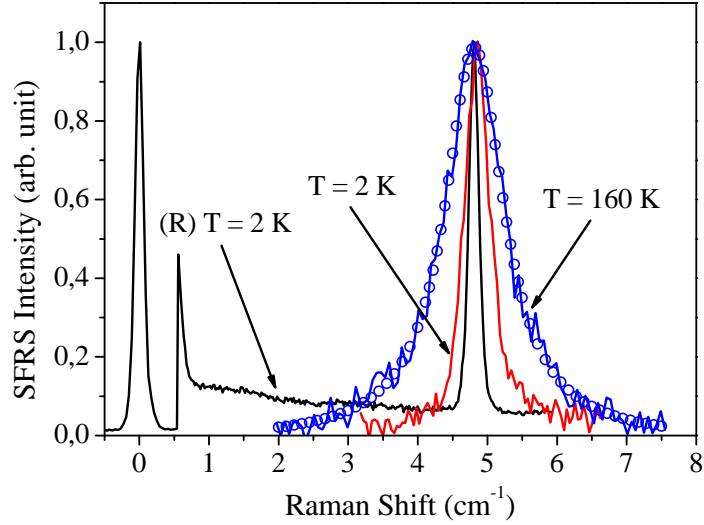


Рис. 1.5: Спектры комбинационного рассеяния с переворотом спина, измеренные в образцах с концентрацией марганца $n = 3 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ - черная кривая, и с атомной долей марганца $x = 4.3 \%$ - красная и синяя кривые. Измерения проводились во внешнем магнитном поле $B = 5 \text{ Т}$ в геометрии Фойгта. Измерения, соответствующие черным и красным кривым, выполнялись при $T = 2 \text{ К}$, а синий спектр снимался при $T = 160 \text{ К}$. Синие открытые круги показывают подгонку Лоренцианом.

и рассеянного (π) света с вектором электрического поля света перпендикулярным (для σ) или параллельным (для π) магнитному полю B .

В магнитном поле, в геометрии Фойгта $x(\sigma, \pi)\bar{x}$, спектры комбинационного рассеяния образцов ФМ, а также образец R демонстрируют сильно поляризованную линию связанную с марганцем и зависящую от магнитного поля. Эта линия отсутствует в точной геометрии Фарадея (падающий луч лазера и магнитное поле перпендикулярно плоскости образца). Однако, отклоняя падающий луч на 10-15 градусов от нормали к плоскости образца активирует линию Mn-КРПС в скрещенной $x(\sigma^+, \sigma^-)\bar{x}$ поляризации. На рис. 1.5 показаны спектры комбинационного рассеяния для двух образцов, измеренных в геометрии Фойгта $x(\sigma, \pi)\bar{x}$ при $B = 5 \text{ Т}$. Синие открытые круги это подгонка Лоренцианом, описываемым (1.34).

Зависимость положения центра линии КРПС в различных экспериментальных геометриях при температуре $T = 2 \text{ К}$ показаны на рис. 1.6 для образца FM2. В нулевом магнитном поле сдвиг линии Mn-КРПС образца R стремится к нулю в

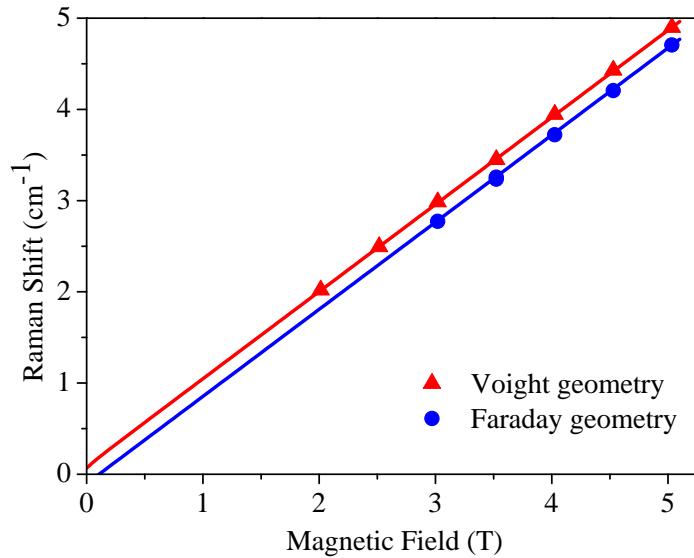


Рис. 1.6: Зависимость от магнитного поля центра линии КРПС для образца FM2 ($x = 4.3\%$), измеренная при $T = 2\text{ К}$ в геометриях Фойгта (сплошные красные треугольники) и Фарадея (сплошные синие круги). Красная и синяя линии - расчет (подробности см. в тексте).

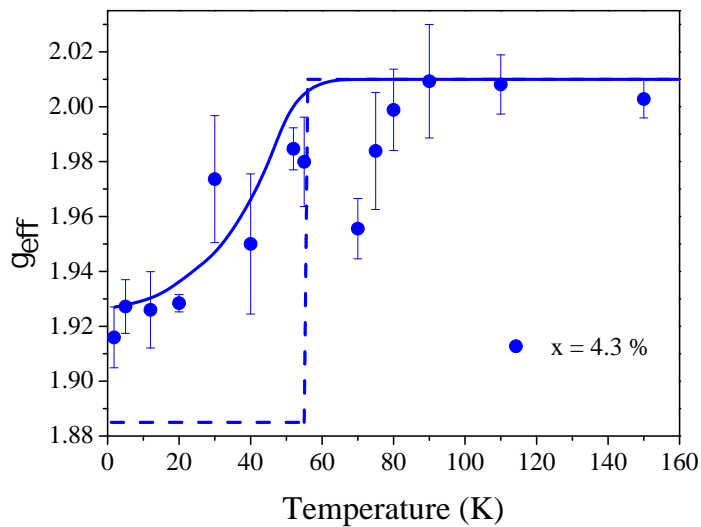


Рис. 1.7: Температурная зависимость эффективного g -фактора марганца в образце FM2 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x$ ($x = 0,043$). Точки - экспериментальные данные, сплошная кривая расчет по формуле (1.44). Пунктирная кривая построена по формуле (1.46).

геометриях Фойгта и Фарадея в исследуемом диапазоне температур $= 1.7 \div 170$ К. Магнитно-полевая зависимость центра линии Mn-КРПС в этом образце (R) может быть представлена как $\Delta_R = g_{Mn}^0 \mu_B B$, с $g_{Mn}^0 = 2.01$, и не зависит от температуры. Напротив, в образцах FM центр линии Mn-КРПС (см. рис. 1.6) экстраполируется в нулевое магнитное поле на положительное смещение в геометрии Фойгта и отрицательный в геометрии Фарадея. При повышении температуры это смещение уменьшается и исчезает при $T > T_C$. Наклон (другими словами, g -фактор) зависимости центра линии КРПС от магнитного поля в образцах FM также зависит от температуры. Для описания наблюдаемой зависимости от магнитного поля центра линии КРПС следует учитывать магнитную анизотропию пленки (Ga,Mn)As [40], а также размагничивающий фактор ферромагнитного слоя. В простейшем приближении плотность свободной энергии F для решетки кристалла цинковой обманки (такой как (Ga,Mn)As) состоит из трех вкладов:

$$F = 2\pi M^2 n_x^2 - \frac{MH_2}{2} n_x^2 - \frac{MH_4}{4} (n_x^4 + n_y^4 + n_z^4), \quad (1.31)$$

где первый член описывает энергию размагничивания; второй и третий слагаемые - это поля анизотропии типа легкая плоскость (H_2) и кубическая анизотропия (H_4), соответственно; n_i - направляющие косинусы, M - намагниченность. Полагается, что кристаллографические оси совпадают с декартовыми координатами осей x, y, z соответственно, а ось x совпадает с направлением роста структуры. Зависимость от магнитного поля сдвига линии комбинационного рассеяния с переворотом спина в образцах FM для геометрии Фарадея и Фойгта даются следующими выражениями:

$$\Delta_F(B, T) = g_{eff}(T) \mu_B (B - 4\pi M + H_4 + H_2) \quad (1.32)$$

$$\Delta_V(B, T) = g_{eff}(T) \mu_B \sqrt{(B + 4\pi M + H_4 - H_2)(B + H_4)} \quad (1.33)$$

На рис. 1.6 представлено зависимость сдвига линии КРПС от магнитного поля для FM2 образца, измеренная в геометрии Фойгта (красные треугольники) и Фарадея (синие круги) при $T = 2$ К. Красные и синие линии на этом рисунке

- это кривые, дающиеся уравнениями (1.32) и (1.33). Для данного образца FM2 наилучшее соответствие было получено с использованием следующих параметров $H_4 = 300$ Ое, $H_2 = -1100$ Ое. Для исследования температурной зависимости g -фактора измерялась зависимость линейного вклада по магнитному полю в сдвиг линии КРПС в широком диапазоне температур, охватывающем ферромагнитную и парамагнитную фазы. Рис. 1.7 показывает температурную зависимость g -фактора определяемую как описано выше. Переход к ферромагнитной фазе сопровождается уменьшением g -фактора иона Mn^{2+} на 5 %.

Еще одной важной особенностью FM образцов является ширина линии КРПС, растущая с температурой, как показано на примере двух спектров рис. 1.5, измеренных при $T = 2$ К (красный спектр) и $T = 160$ К (синий спектр) в поле $B = 5$ Т. Температурная зависимость ширины линии КРПС, измеренная при $B = 5$ Т для образцов FM1 и FM2 показана на рис. 1.8. В обоих случаях ширина линии КРПС не чувствительна к температуре ниже T_C и сильно возрастает при $T > T_C$. Как правило, ширина линии КРПС определяется двумя факторами: однородное и неоднородное уширение. Последнее связано с дисперсией g -фактора марганца. Поскольку ширина линии КРПС в FM образцах не зависит от магнитного поля, мы можем заключить, что измеренная ширина линии Mn-КРПС определяется исключительно однородным уширением, связанным с поперечным временем жизни подсистемы спинов Mn. Поэтому время жизни спина Mn можно определить по ширине линии КРПС. Процесс КРПС можно описать в терминах матрицы рассеяния $dI/d\omega d\Omega \sim |\langle f | \hat{S} | i \rangle|^2$, где \hat{S} - матрица рассеяния, I - интенсивность рассеянного света, $|i\rangle, |f\rangle$ - начальное и конечное состояния фотонов, соответственно. Третий порядок теории возмущений дает первый ненулевой вклад в линию комбинационного рассеяния с переворотом спина. А именно, второй порядок по электрон-фотонному взаимодействию \hat{V}_{ph} и первый порядок по обменному взаимодействию фтовозбужденной дырки с $3d^5$ электронами марганца $\hat{V}_{ex} = A(\hat{S}\hat{J})$, где A - константа обмена, \hat{S}, \hat{J} - операторы спинов марганца и

дырки, соответственно. Предполагая $\hat{\mathbf{S}}^\pm(t) \sim e^{-\gamma t \mp i\omega_B t}$, можно показать, что отношение спектральной плотности рассеяного света линии КРПС к ее максимуму интенсивности в окрестности линии равна:

$$\frac{I_\omega(\omega)}{I_\omega(\omega_i \pm \omega_B)} \sim \frac{\gamma^2}{(\omega_i - \omega \pm \omega_B)^2 + \gamma^2}, \quad (1.34)$$

где I_ω - спектральная плотность интенсивности на единицу телесного угла, ω_B - частота прецессии спина марганца, ω_i - частота падающего света, \pm - анти-Стоксов и Стоксов спин-флип процесс рассеяния фото возбужденной дырки на марганце. Обсудим теперь происхождение линии КРПС на рис. 1.5 в геометрии Фойгта. Используя линейно y -поляризованный свет, распространяющийся вдоль оси x , носители в следующих спиновых поляризациях могут возбуждаться: $|c, +\frac{1}{2}\rangle|v, +\frac{3}{2}\rangle$, $|c, +\frac{1}{2}\rangle|v, -\frac{1}{2}\rangle$, $|c, -\frac{1}{2}\rangle|v, +\frac{1}{2}\rangle$, $|c, -\frac{1}{2}\rangle|v, -\frac{3}{2}\rangle$, где c, v - обозначают электроны зоны проводимости и дырки валентной зоны в сферической аппроксимации, соответственно. Линия Стокса появляется в спектре КРПС из-за $\hat{S}_+ \hat{J}_-$ спин-флипа. После одного рассеяния с переворотом спина, спин состояний носителей будет $|c, +\frac{1}{2}\rangle|v, +\frac{1}{2}\rangle$, $|c, +\frac{1}{2}\rangle|v, -\frac{3}{2}\rangle$, $|c, -\frac{1}{2}\rangle|v, -\frac{1}{2}\rangle$. Можно видеть, что свет, рассеянный в направлении \bar{x} , имеет z линейную поляризацию, когда носители рекомбинируют из $|c, +\frac{1}{2}\rangle|v, +\frac{1}{2}\rangle$, $|c, -\frac{1}{2}\rangle|v, -\frac{1}{2}\rangle$ состояний. Из (1.34) следует, что ширина линии определяется γ . На рисунке 1.9 изображена зависимость скорости поперечной спиновой релаксации иона Mn^{2+} во внешнем магнитном поле для образца FM2. Видно, что γ не зависит от магнитного поля B при ($T = 2$ К) и выше точки Кюри ($T = 150$ К). Следует обратить внимание, что для образца с одиночными центрами марганца (R) ширина линии КРПС равна $0,19 \text{ см}^{-1}$ во всем исследуемом диапазоне температур $2 \div 200$ К. Из этой ширины линии КРПС мы оцениваем время поперечной спиновой релаксации одиночного иона марганца $\tau_{Mn} \gtrsim 100$ пс.

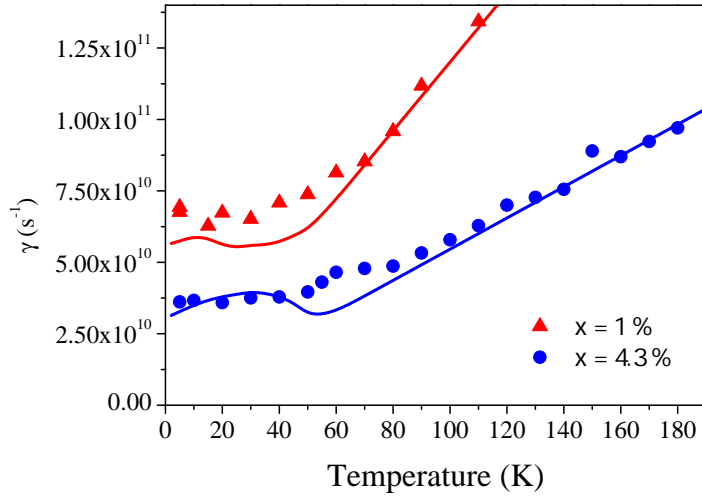


Рис. 1.8: Температурная зависимость частоты поперечной спиновой релаксации марганца в $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ с $x = 1\%$ - красные символы и кривая, $x = 4.3\%$ - синие символы и кривая. Эксперимент выполнен в геометрии Фойгта во внешнем магнитном поле $B = 5\text{ T}$. Символы - экспериментальные данные, сплошные кривые построены по формуле (1.45).

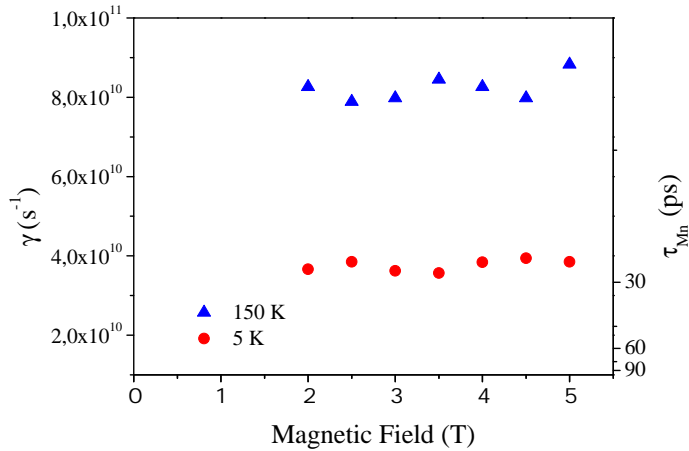


Рис. 1.9: Зависимость от магнитного поля частоты поперечной спиновой релаксации марганца в $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x$, $x = 4.3\%$ для двух разных температур. Красные круги и синие треугольники соответствуют температурам $T = 5\text{ K}$ и $T = 150\text{ K}$.

1.3.2 Теория

Исследуемый в данной работе РМП содержит $1 < x < 8$ % атомных процента марганца с ферромагнитным переходом на температуре T_C . Хорошо известно, что ферромагнетизм в (Ga,Mn)As обусловлен дырками, вызывающими корреляции спинов марганца (см. [4]). Взаимодействие с дырками так же приводит к модификации g -фактора марганца и его спиновой релаксации. Для изучения спиновой релаксации и модификации g -фактора марганца рассмотрим (Ga,Mn)As во внешнем стационарном, однородном магнитном поле и рассмотрим динамику намагниченности при выведении системы из состояния равновесия. Спиновую динамику (Ga,Mn)As во внешнем магнитном поле можно описывать в приближении среднего поля [41], как две магнитные подсистемы. Первая состоит из спинов $3d^5$ внутренней оболочки Mn^{2+} с g -фактором $g_S = 2.01$ и намагниченностью \mathbf{M}_S . Вторая подсистема - это дырки характеризующиеся параметрами g_J и \mathbf{M}_J . Уравнения движения намагниченностей для двух подсистем:

$$\frac{d\mathbf{M}_S}{dt} = C_1 \frac{\mu_B g_S}{\hbar} \mathbf{M}_S \times \Delta \mathbf{M}_S + C_3 \frac{\mu_B g_S}{\hbar} \mathbf{M}_S \times \Delta \mathbf{M}_J + \frac{\mu_B g_S}{\hbar} \mathbf{B} \times \mathbf{M}_S - \frac{\lambda \mu_B g_S}{\hbar} \mathbf{M}_J \times \mathbf{M}_S, \quad (1.35)$$

$$\frac{d\mathbf{M}_J}{dt} = C_2 \frac{\mu_B g_J}{\hbar} \mathbf{M}_J \times \Delta \mathbf{M}_J + C_3 \frac{\mu_B g_J}{\hbar} \mathbf{M}_J \times \Delta \mathbf{M}_S + \frac{\mu_B g_J}{\hbar} (\mathbf{B} + \mathbf{B}_{an}) \times \mathbf{M}_J - \frac{\lambda \mu_B g_J}{\hbar} \mathbf{M}_S \times \mathbf{M}_J + D \Delta \mathbf{M}_J - \gamma_h (\mathbf{M}_J - \mathbf{M}_J^0). \quad (1.36)$$

Первые два слагаемых описывают спиновые волны. Константы C_i описывают спектр спиновых волн, типичные значения для (Ga,Mn)As лежат в диапазоне $10^{-12} \div 10^{-13}$ см² (см. [42, 43, 44]). Слагаемые содержащие λ описывают взаимодействие между двумя магнитными подсистемами и типичная величина [23] составляет $\lambda \sim 10^3 \div 10^4$. В уравнения (1.35,1.36) так же включены спиновая диффузия ($D \sim 0.1 \div 0.2$ см²/с (см. [23]) - коэффициент спиновой диффузии), частота спиновой релаксации дырок $\gamma_h \sim 1.1 \cdot 10^{12}$ с⁻¹ (см. [45, 23]), связанная с сильным спин орбитальным взаимодействием в валентной зоне GaAs и поле магнитной анизотропии \mathbf{B}_{an} (см. [27, 28, 29, 23]) происходящем из сложной валентной зоны. Будем

считать, что внешнее магнитное поле в уравнениях (1.35,1.36) направленно по оси z . Система уравнений (1.35,1.36) содержит два решения, высокочастотное - обменный резонанс и низкочастотное, с вещественной частью зависящей линейным образом от магнитного поля, характеризующее эффективный g -фактор марганца и его спиновую релаксацию. Будем решать уравнения движения предполагая внешнее магнитное поле большим по сравнению с полем магнитной анизотропии $B \gg B_{an}$. Магнитная анизотропия вносит малый, не зависящий от магнитного поля вклад в частоту прецессии марганца, которым мы пренебрежем.

Уравнения движения намагниченности нелинейные, однако, в пределе малых отклонений от равновесия они могут быть линеаризованы. Усреднение системы (1.35,1.36) и ее решение с точностью до линейных слагаемых по отклонению намагниченностей от равновесного положения позволяет описать модификацию g -фактора марганца. Однако, этого оказывается не достаточно для описания релаксации спина марганца при температурах выше температуры Кюри и необходим учет нелинейных слагаемых. Нелинейные слагаемые приводят к двум эффектам. Первый связан с нелинейной когерентной динамикой. Это проявляется в генерации второй гармоники и зависимости частоты прецессии от амплитуды, которыми можно пренебречь в случае режима малых отклонений. Вторым эффектом связан с наличием флуктуаций намагниченности, что и приводит к дополнительному вкладу в спиновую релаксацию. Для учета вклада нелинейных слагаемых решим уравнения (1.35,1.36) на z компоненту намагниченности и подставим $M_{S,J}^z$ в уравнения на поперечные $M_{S,J}^{\pm}$ компоненты. Теперь мы можем усреднить получившиеся уравнения движения. Представим намагниченность в виде $\mathbf{M}_i = \mathbf{M}_i^0 + \mathbf{M}_i(t) + \delta\mathbf{M}_i(x, t)$, где \mathbf{M}_i^0 - равновесная намагниченность, $\mathbf{M}_i(t)$ - однородная в пространстве намагниченность, описывающая прецессию во внешнем однородном магнитном поле, $\delta\mathbf{M}_i(x, t)$ - флуктуации намагниченности, по которым будет сделано усреднение с функцией распределения, показанной ниже. При этом мы полагаем $M_i^0 \gg M_i(t), \delta M_i(x, t)$. Так как спин марганца взаимо-

действует преимущественно со спином дырок, и у дырков имеется сильное спин орбитальное взаимодействие, можно рассматривать флуктуации только дырочной подсистемы. Для удобства введем следующие обозначения: $\lambda_S = g_S \lambda_{\mu_B} / \hbar$, $\lambda_J = g_J \lambda_{\mu_B} / \hbar$, $\omega_B = B \mu_B / \hbar$. После усреднения получаются следующие уравнения движения намагниченности:

$$\begin{cases} \frac{dM_S^+(t)}{dt} = i(g_S \omega_B - \lambda_S M_J^0) M_S^+(t) - \int^t d\tau I(t - \tau) M_S^+(\tau) + i\lambda_S M_S^0 M_J^+(t), \\ \frac{dM_J^+(t)}{dt} = i\lambda_J M_J^0 M_S^+(t) + \frac{g_J}{g_S} \int^t d\tau I(t - \tau) M_S^+(\tau) + i(g_J \omega_B - \lambda_J M_S^0 + i\gamma_h) M_J^+(t), \end{cases} \quad (1.37)$$

$$I(t - \tau) \approx \frac{\lambda_S^2}{2} \langle \delta M_J^+(x, t) \delta M_J^-(x, \tau) \rangle. \quad (1.38)$$

В выражении (1.38) было пренебрежено слагаемыми пропорциональными C_i , малыми по параметру $C_i k_f^2 / \lambda \ll 1$, где k_f^{-1} - характерная длина флуктуаций. Из-за однородности системы по времени, в (1.37) положена зависимость от разности времен. $\langle \cdot \rangle$ означает усреднение по флуктуациям намагниченности с эффективным гамильтонианом:

$$\mathcal{H}(\delta M_J) = \frac{C_J}{2} \frac{\partial \delta M_J^i}{\partial x_j} \frac{\partial \delta M_J^j}{\partial x_i} + \frac{\alpha_J}{2} \delta M_J^i \delta M_J^i, \quad (1.39)$$

$$\langle f(\delta M_J) \rangle = \frac{\int D[\delta M_J] f(\delta M_J) e^{-\int dV \mathcal{H}(\delta M_J)/T}}{\int D[\delta M_J] e^{-\int dV \mathcal{H}(\delta M_J)/T}}. \quad (1.40)$$

Выражение (1.40) справедливо только для усреднения одновременных полей намагниченностей. В систему уравнений динамики намагниченностей (1.37) входят корреляторы от полей с разными моментами времени. Для их расчета необходимо выразить значение поля в момент времени t через время τ используя уравнения движения для флуктуаций:

$$\frac{d\delta M_J^+}{dt} = [ig_J \omega_B - \gamma_h] \delta M_J^+ + D \Delta \delta M_J^+ \quad (1.41)$$

$$\delta M_J^+(x, t) = \int dx' G_J(t - \tau, x - x') \delta M_J^+(x', \tau) \quad (1.42)$$

Тогда мы можем найти фурье образ искомого коррелятора:

$$I(\omega) = 2\lambda_S^2 \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^4} \frac{T}{(i\omega + Dk^2 + \gamma_h)(C_J k^2 + \alpha_J)} \quad (1.43)$$

Эффективный g -фактор марганца и его время спиновой релаксации $1/\gamma$ в предположении $\gamma_h \gg \mu_B g_i B/\hbar$:

$$g_{eff}(T, B) \approx g_S - (g_S - g_J) \frac{\lambda_S M_J^0 (\lambda_J M_S^0 + \lambda_S M_J^0)}{(\lambda_J M_S^0 + \lambda_S M_J^0)^2 + \gamma_h^2}, \quad (1.44)$$

$$\gamma(T, B) \approx \frac{\lambda_S^2 T}{(2\pi)^2 (C_J \sqrt{D} \gamma_h + D \sqrt{\alpha_J C_J})} + \gamma_h \frac{\lambda_S M_J^0 (\lambda_J M_S^0 + \lambda_S M_J^0)}{(\lambda_J M_S^0 + \lambda_S M_J^0)^2 + \gamma_h^2}. \quad (1.45)$$

Для расчета температурных зависимостей $g_{eff}(T)$ (1.44) и $\gamma(T)$ (1.45), используются экспериментальные данные кривой намагничивания в образце FM2 представленном на рис. 1.4. Так же воспользуемся сильной разницей в их величинах [4, 46, 23] $M_J^0/M_S^0 \ll 1$ и положим для простоты данное соотношение не зависящем от температуры и магнитного поля.

1.3.3 Обсуждение.

Температурные зависимости эффективного g -фактора и частоты поперечной спиновой релаксации марганца (γ), рассчитанные на основе выражений (1.44) и (1.45) показаны сплошными кривыми на рис. 1.7 и рис. 1.8, соответственно. На рис. 1.7 теоретическая кривая сравнивается с измеренным g -фактором в образце FM2, а на рис. 1.8 показана температурная зависимость ширины линии комбинационного рассеяния (т.е. γ), измеренная при $B = 5$ Т для образцов FM1 и FM2. Для расчета g -фактора и γ образца FM1 мы использовали следующие параметры: $M_J/M_S = 0,08$ ([46]), $D = 0,09$ см²/с, $M_S^0 = 5$ ему/см³. Аналогично для образца FM2 эти параметры $M_J/M_S = 0.02$, $D = 0.19$ см²/с, $M_S^0 = 21$ ему/см³. Оставшиеся параметры $\lambda = 2650$, $C_J = 10^{-12}$ см² (ссылка [43]), $g_J = -1$ (см. [47]), $\gamma_h = 1.1 \cdot 10^{12}$ с⁻¹ (см. [45]), $\alpha_J = 5000$ одинаковы для образцов FM1 и FM2. Мы видим, что общие особенности экспериментальных результатов удовлетворительно воспроизводятся расчетными кривыми.

Как видно из (1.44) модификация g фактора марганца происходит из-за связи между магнитными подсистемами и зависит от наличия среднего магнитного момента в системе. По мере увеличения температуры выше температуры Кюри g

фактор стремится к 2 - g фактору электронов d оболочки марганца. Выражение (1.44) при уменьшении частоты спиновой релаксации дырок переходит в хорошо известное выражение [41, 24, 26] для g фактора в магнитных материалах с двумя магнитными подсистемами:

$$g_{eff} = \frac{M_S^0 + M_J^0}{M_S^0/g_S + M_J^0/g_J}. \quad (1.46)$$

Температурная зависимость даваемая выражением (1.46) показана на рис. 1.7 пунктирной кривой. Сравнение вычисленных зависимостей для эффективного g фактора марганца (1.44, 1.46) показывает, что общие особенности экспериментальной температурной зависимости $g_{eff}(T)$ воспроизводятся лучше по формуле (1.44) (сплошная кривая), которая учитывает конечное значение γ_h частоты спиновой релаксации дырок. Заметим, что выражение (1.46) неприменимо вблизи точки Кюри, т.е. когда $B \gtrsim \lambda M_S^0(T)$.

Из выражения (1.45) видно наличие двух вкладов в процесс спиновой релаксации марганца. Первый механизм спиновой релаксации связан с сильной спиновой релаксацией дырок и, вследствие коллективного движения марганцевой и дырочной подсистем, приводит к релаксации спина марганца. Для этого вклада важно наличие среднего магнитного момента в системе. Второй механизм связан со спиновыми флуктуациями дырок, из-за взаимодействия дырочной и марганцевой подсистем, и приводит к возникновению случайного дефазированного поля, действующего на спин марганца. Этот механизм не зависит от магнитного момента в системе и как следствие наблюдается, как до, так и после ферромагнитного перехода. При температурах ниже температуры Кюри основным механизмом спиновой релаксации - первый, по мере роста температуры, его вклад уменьшается и в парамагнитной фазе все отределяется флуктуациями спина дырок. Величины этих вкладов сопоставимы, как можно видеть из рис. 1.8. При увеличении спиновой диффузии дырок время спиновой релаксации марганца уменьшается, т.к. дырочная спиновая флуктуация быстрее распространяется и как следствие меньше успевает воздействовать на спин марганца. Это объясняет уменьшение наклона

температурной зависимости по мере роста концентрации марганца. При уменьшении спиновой диффузии частота спиновой релаксации, определяемая флуктуациями, выходит на предел определяемый слагаемым $C_J\sqrt{D\gamma_h}$ в знаменателе, т.к. $D \sim v_F^2/\gamma_h$ (v_F - скорость ферми дырок) и становится равной $\sim \lambda_S^2 T/(C_J v_F)$.

1.4 Краткие итоги

- Развита теория спиновой релаксации электронов в квантовых ямах с магнитными примесями, учитывающая их спин-спиновые корреляции. Такие корреляции могут быть вызваны косвенным обменным взаимодействием через делокализованные носители (РККИ). При низких температурах возникает дополнительный вклад в скорость спиновой релаксации из-за флуктуирующего обменного поля, созданного коррелированными магнитными спинами. По мере увеличения температуры спиновые корреляции ослабляются, а спиновая релаксация электронов замедляется до значения, определяемого независимыми от температуры процессами рассеяния с переворотом спина на одиночном центре. Увеличение концентрации носителей, обуславливающих косвенный обмен, способствует усилению спиновых корреляций и, тем самым, ускоряет релаксацию электронного спина.
- Разработана теория релаксации спина марганца и рассчитан его эффективный g -фактор в магнитном полупроводнике $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$. Определены их зависимости от температуры, включая ферромагнитную и парамагнитную фазы. Обнаружено два основных механизма спиновой релаксации марганца, связанные с наличием дырок. В арсениде галлия, легированном марганцем, дырки проявляют себя двояко: как переносчики магнитного взаимодействия между центрами марганцев и как канал для их спиновой релаксации. Сильное спин-орбитальное взаимодействие дырок приводит к коротким временам их спиновой релаксации, а обменное взаимодействие дырок с $3d^5$ электронами марганца вызывает его быструю спиновую релаксацию. Данный механизм спиновой релаксации марганца доминирует в парамагнитной фазе, а в ферромагнитной фазе основной механизм спиновой релаксации Mn связан с флуктуациями спина дырок.

Глава 2

Резонансное косвенное обменное взаимодействие в полупроводниковых наноструктурах

2.1 Введение

В последнее время, полупроводниковые гетероструктуры с парамагнитными примесями пространственно отделенными от свободных носителей заряда интенсивно исследуются в рамках полупроводниковой спинтроники. Экспериментальные данные показывают, что парамагнитные ионы, расположенные рядом с квантовой ямой (КЯ) индуцируют существенную спиновую поляризацию двумерных носителей заряда в квантовой яме при сохранении их высокой подвижности [48, 49].

Туннелирование носителей заряда между связанными состояниями примесей и континуумом делокализованных носителей могут также играть важную роль во взаимодействии ионов между собой. Такое косвенное обменное взаимодействие между ионами Mn, через делокализованные дырки, считается ключевым механизмом, лежащим в основе ферромагнитного упорядочения в полупроводниках на InGaAs-основе, легированных Mn [4]. В гетероструктурах с дельта-слоем марганца расположенным рядом с КЯ экспериментальные данные свидетельствуют о влиянии КЯ на ферромагнитные свойства слоя [50, 51], скорее всего, из-за свободных 2D-дырок в КЯ [52]. Непрямое обменное взаимодействие через свободные носите-

ли обычно описываются на основе хорошо известной теории Рудермана-Киттеля-Касуя-Йосиды (РККИ), в рамках которой рассчитывается изменение энергии электронного газа во втором порядке теории возмущений [53]. Теория РККИ игнорирует тот факт, что притягивающий потенциал иона может иметь связанное состояние, и рассеяние свободного носителя может иметь резонансный характер, при этом теория возмущений перестает работать. В первой части данной главы будет представлен новый подход к расчету косвенного обменного парного взаимодействия, учитывающий резонансное состояние магнитного центра непертурбативным образом.

Развитая теория резонансного косвенного обмена будет применена для объяснения ферромагнитных свойств гибридной гетероструктуры состоящей из квантовой ямы на основе InGaAs, между барьерами GaAs с пространственно отделенным Mn δ -слоем. Экспериментально наблюдаемая зависимость температуры Кюри от глубины QW проявляет максимум, связанный с областью резонансного косвенного обмена. Сравнение рассчитанной зависимости температуры Кюри от глубины КЯ удовлетворительно согласуется с экспериментальными данными.

Во второй части данной главы будет исследоваться косвенное обменное взаимодействие двух магнитных адатомов помещенных на поверхность графена. Немало экспериментов сосредоточено на введении магнитных свойств в графен путем его легирования магнитными атомами. Магнитные адатомы, нанесенные на поверхность графена могут эффективно связываться с ним и участвовать в косвенном обменном взаимодействии через свободные носители. Проблема также актуальна для других двумерных слоистых кристаллов, таких как дихалькогениды переходных металлов с магнитными адатомами [54, 55]. В принципе, пространственное разделение между магнитным центром и свободными носителями приводит к уменьшению косвенного обмена из-за слабого перекрытия их волновых функций. Однако, если магнитный центр обладает связанным состоянием с уровнем энергии, соответствующим диапазону энергий делокализованных носителей, кос-

венный обмен резко возрастает из-за резонансного туннельного эффекта [56, 57], что и будет исследовано в данном разделе.

2.2 Резонсное косвенное обменное взаимодействие в квантовых ямах с удаленным δ -слоем магнитных примесей

В данном разделе представлено исследование парного косвенного обменного взаимодействия магнитных центров с учетом наличия локализованных состояний у примесей. В классической задаче косвенного обмена решенной Рудерманом-Киттелем-Касуей-Йосидой изучалось взаимодействие магнитных примесей в металле через электронный газ, который сильно экранировал притягивающий потенциал примесей. В полупроводниковых гетероструктурах возможна реализация систем с магнитными примесями обладающими локализованными состояниями. Примером данной системы является полупроводниковая яма с делокализованными носителями заряда в ней и расположенный в нескольких нанометрах дельта-слой магнитных примесей. Варьируя параметры структуры можно добиться попадания энергии локализованного состояния примеси в заполненные состояния континуума КЯ, тем самым активируя резонансное рассеяние. Результатом данного раздела является получение зависимости энергии косвенного обменного взаимодействия двух магнитных центров от расстояния между ними, энергии локализованного состояния, туннельной связи и константы обменного взаимодействия. Для решения данной задачи использовалась точно решаемая модель Фано-Андерсона, описывающая туннельную связь связанного состояния зависящего от спина носителя с континуумом [58, 59].

2.2.1 Теория

В качестве модели, рассмотрим гетероструктуру содержащую квантовую яму и δ -слой парамагнитных ионов, отделенный от КЯ туннельным барьером. Предполагается, что парамагнитные ионы имеют связанные состояния, характеризующиеся энергией ε_0 , а КЯ имеет континуум двумерных состояний, занимающий нижний уровень размерного квантования и заполненный до уровня Ферми E_F . Резонансное

условие означает, что ε_0 лежит внутри энергетического диапазона континуума. Рассмотрим два парамагнитных иона расположенных достаточно далеко друг от друга, так что они не взаимодействуют непосредственно. Оба иона расположены близко к КЯ, так что имеется туннелирование между локализованными состояниями ионов и континуумом КЯ. Обменное взаимодействие между локализованным электроном и внутренними электронами магнитного центра описывается следующим гамильтонианом:

$$H_J = J\widehat{\mathbf{S}} \left[\delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_1)\widehat{\mathbf{I}}_1 + \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_2)\widehat{\mathbf{I}}_2 \right]. \quad (2.1)$$

где $\mathbf{R}_{1,2}$ - положения ионов, $\widehat{\mathbf{I}}_{1,2}$, $\widehat{\mathbf{S}}$ - операторы спина для иона и локализованного носителя соответственно, J - константа обмена. Теория РККИ [53] дает энергию взаимодействия магнитных центров пропорциональную $J^2 \langle \widehat{\mathbf{I}}_1 \widehat{\mathbf{I}}_2 \rangle$. В настоящем разделе, мы покажем, что резонансная туннельная связь со свободными носителями может существенно усилить энергию взаимодействия.

Если мы попытаемся выйти за рамки теории возмущений и рассмотрим точное решение для гамильтониана, содержащего (2.1) задача становится намного более сложной. В настоящей работе предлагается подход, который позволяет оценить энергию косвенного обменного взаимодействия для малой константы обмена $J\nu \ll 1$ (ν - плотность состояний на уровне Ферми), однако учитывая точно резонансное состояние. В рамках данного подхода можно пренебречь динамикой спинов ионов и будем рассматривать их классически, заменяя соответствующие операторы на классические моменты I_1, I_2 . Энергия косвенного обменного взаимодействия может быть оценена как разность энергии системы между параллельной и антипараллельной конфигурацией спинов двух примесей ионов.

Для (анти) параллельной ионной спиновой конфигурации H_J (2.1) не смешивает по спину свободные носители, так что можно заменить $\widehat{\mathbf{S}}$ на параметр $s = \pm|s|$. Полный гамильтониан системы состоит из трех вкладов:

$$H = H_0 + H_T + H_J, \quad (2.2)$$

где H_0 - Гамильтониан системы без туннельной связи и спин-спинового взаимодействия, H_T - туннельный гамильтониан Бардина [60], H_J - гамильтониан обменного взаимодействия (2.1). В представлении вторичного квантования:

$$\begin{aligned} H_0 &= \varepsilon_0 a_1^+ a_1 + \varepsilon_0 a_2^+ a_2 + \int \varepsilon_\lambda c_\lambda^+ c_\lambda d\lambda, \\ H_T &= \int (t_{1\lambda} c_\lambda^+ a_1 + t_{2\lambda} c_\lambda^+ a_2 + h.c.) d\lambda, \\ H_J &= JA (I_1 s a_1^+ a_1 + I_2 s a_2^+ a_2), \end{aligned} \quad (2.3)$$

где $a_{1,2}^+, a_{1,2}$ - операторы рождения и уничтожения связанных состояний на примесных ионах 1, 2, характеризующихся энергией ε_0 и локализованными волновыми функциями ψ_1, ψ_2 . c_λ^+, c_λ - операторы рождения и уничтожения для состояний континуума, характеризующихся квантовыми числами λ , имеющие энергию ε_λ и волновые функции φ_λ , энергия отчитывается от дна уровня размерного квантования КЯ,

$$A = |\psi_1(\mathbf{R}_1)|^2 = |\psi_2(\mathbf{R}_2)|^2. \quad (2.4)$$

Коэффициенты в туннельном гамильтониане имеют следующий вид [60, 59]:

$$t_{1,2}(\lambda) = -\frac{\hbar^2}{2m_\perp} \int_{\Omega_S} dS \left(\varphi_\lambda^* \frac{d}{dz} \psi_{1,2} - \psi_{1,2} \frac{d}{dz} \varphi_\lambda \right), \quad (2.5)$$

где интегрирование выполняется по плоскости Ω_S , параллельной КЯ и проходящей через центры ионов, m_\perp - это эффективная масса в направлении, перпендикулярном плоскости КЯ. Гибридизованные собственные функции Ψ всей системы состоят из функций связанных состояний и делокализованных состояний:

$$\Psi = \nu_1 \psi_1 + \nu_2 \psi_2 + \Phi, \quad (2.6)$$

$$\Phi = \int \nu_\lambda \varphi_\lambda d\lambda. \quad (2.7)$$

Подставляя (2.6) в стационарное уравнение Шредингера $H\Psi = E\Psi$ с Гамильтони-

аном (2.2) найдем:

$$\begin{aligned}
\nu_1 (\varepsilon_0 - E + JAI_1 s) + \int t_{1\lambda} \nu_\lambda d\lambda &= 0 \\
\nu_2 (\varepsilon_0 - E + JAI_2 s) + \int t_{2\lambda} \nu_\lambda d\lambda &= 0 \\
\nu_\lambda (\varepsilon - E) + \nu_1 t_{1\lambda}^* + \nu_2 t_{2\lambda}^* &= 0.
\end{aligned} \tag{2.8}$$

Действуя по методу Фано [58] ν_λ выражается из последнего уравнения (2.8) следующим образом:

$$\nu_\lambda = P \frac{\nu_1 t_{1\lambda}^* + \nu_2 t_{2\lambda}^*}{E - \varepsilon} + Z (\nu_1 t_{1\lambda}^* + \nu_2 t_{2\lambda}^*) \delta(E - \varepsilon), \tag{2.9}$$

где P означает главное значение и $Z(E)$ необходимо найти. Подставляя (2.9) в (2.8):

$$\begin{aligned}
\nu_1 (JAI_1 s + F_{11} + ZT_{11} - E') + \nu_2 (F_{21} + ZT_{21}) &= 0 \\
\nu_1 (F_{12} + ZT_{12}) + \nu_2 (JAI_2 s + F_{22} + ZT_{22} - E') &= 0,
\end{aligned} \tag{2.10}$$

где

$$\begin{aligned}
F_{\alpha\beta} &= P \int \frac{t_{\alpha\lambda}^* t_{\beta\lambda}}{E - \varepsilon} d\lambda, \quad T_{\alpha\beta} = \int t_{\alpha\lambda}^* t_{\beta\lambda} \delta(\varepsilon - E) d\lambda, \\
E' &= E - \varepsilon_0, \quad \alpha, \beta = 1, 2.
\end{aligned} \tag{2.11}$$

Из условия нетривиальности решения (2.10) найдем дисперсионное уравнение для Z , которое определяет зависящий от энергии сдвиг фазы из-за рассеяния на связанном состоянии [58]. При размерном квантовании системы (помещении континуума в "ящик"), фазовый сдвиг влияет на условие квантования волнового вектора и, таким образом, изменяется энергия всей системы. Для перехода к конкретному случаю рассмотрим два иона расположенного на одном и том же расстоянии d от КЯ, и расстоянии R между ними. Ось z нормальна к плоскости КЯ ($z = 0$ соответствует границе КЯ), ось x проходит через центры ионов с $x = 0$ в их середине. Таким образом, координаты ионов:

$$\mathbf{R}_1 = (-R/2, 0, d); \quad \mathbf{R}_2 = (R/2, 0, d).$$

Поскольку предполагается, что $R \gg d$ и локализованные волновые функции ψ_1, ψ_2 не перекрываются, их конкретная форма не важна. Для оценки туннельного матричного элемента, возьмем локализованные волновые функции в виде:

$$\psi_{1,2} = \left(\frac{2}{\pi r_0^2} \right)^{3/4} e^{-\left(\frac{x \pm R/2}{r_0}\right)^2} e^{-\left(\frac{y}{r_0}\right)^2} e^{-\left(\frac{z-d}{r_0}\right)^2}, \quad (2.12)$$

где r_0 - радиус локализации. Волновые функции континуума берутся в следующем виде:

$$\varphi_{\mathbf{k}} = \eta(z) e^{i\mathbf{k}\rho}. \quad (2.13)$$

Здесь \mathbf{k} - волновой вектор в плоскости, ρ - 2D радиус-вектор в плоскости, $\eta(z)$ - огибающая функции размерного квантования вдоль z . Вне КЯ:

$$\eta(z) = \zeta a^{-1/2} e^{-q|z|}, \quad (2.14)$$

где $q = \sqrt{2m_{\perp}E_0}/\hbar^2$, E_0 - это энергия связи связанного состояния, a - ширина КЯ, ζ - безразмерный параметр, слабо зависящий от q и a . Для реалистичной прямоугольной КЯ $\zeta \approx 0.5$. Расчет (2.5), используя (2.12) (предполагая $r_0 \ll k^{-1}$) и (2.13) дает:

$$t_{1,2}(k) = \sqrt{\frac{\hbar^2 T}{2\pi m}} e^{-i\mathbf{k}\mathbf{R}_{1,2}}, \quad (2.15)$$

где T - энергетический параметр туннелирования:

$$T = (2\pi)^{3/2} \zeta^2 \frac{r_0 m}{am_{\perp}} E_0 e^{-2qd}, \quad (2.16)$$

m - эффективная масса вдоль КЯ. Подставляя (2.15) в (2.11) получим:

$$\begin{aligned} T_{11} = T_{12} = T, \quad T_{12} = T_{21} \equiv t = T J_0(kR), \\ F_{11} = F_{22} \equiv F, \quad F_{12} = F_{21} \equiv f = \pi T Y_0(kR), \end{aligned} \quad (2.17)$$

где J_0, Y_0 - функции Бесселя и Неймана нулевого порядка, $= \sqrt{2mE}/\hbar$. Величина F представляет собой смещение положения резонансного уровня относительно ε_0 , его явное вычисление требует более точное выражение, чем (2.15) с учетом $k \sim r_0^{-1}$, для избежания расходимости. Однако это не понадобится, так как F имеет порядок T и не зависит от R . Из (2.10) следует дисперсионное уравнение для

Z :

$$(ZT + F - E' + JAI_1s)(ZT + F - E' + JAI_2s) = (f + Zt)^2. \quad (2.18)$$

Для параллельной спиновой конфигурации примесей $I_1 = I_2 = I$ найдем два корня:

$$Z_{\pm} = -\frac{JAI_s + F \pm f - E'}{T \pm t}. \quad (2.19)$$

Z_{\pm} соответствует $\nu_1 = \pm\nu_2$, так что гибридный волновая функция (2.6) либо симметрична, либо антисимметрична по отношению к $x \rightarrow -x$. Это связано с симметрией спиновой конфигурации примесей. С использованием (2.6) и (2.9) делокализованная часть гибридной волновой функции определяется как:

$$\Phi_{\pm} = C_{\pm} [J_0(k\rho_1) \cos \Delta_{\pm} - H_0(k\rho_1) \sin \Delta_{\pm} \pm J_0(k\rho_2) \cos \Delta_{\pm} \mp H_0(k\rho_2) \sin \Delta_{\pm}], \quad (2.20)$$

где J_0 и H_0 функции Бесселя и Струве нулевого порядка, $\rho_{1,2} = |\rho - \mathbf{R}_{1,2}|$,

$$\tan \Delta_{\pm}(E) = -\frac{\pi}{Z_{\pm}(E)}, \quad C_{\pm} = -\frac{\pi T \nu_1 \eta(d)}{\sin \Delta_{\pm}}.$$

Решение исходного гамильтониана является линейной комбинацией найденных функций:

$$\Phi(\rho) = A\Phi_+(\rho) + B\Phi_-(\rho).$$

Поместим систему в цилиндр с нулевым потенциалом по радиусу от 0 до L и бесконечным потенциалом при больших расстояниях. Тогда граничные условия на волновые функции будет $\Phi(L) = 0$. Используя асимптотики для Φ_+, Φ_- получим следующие условия квантования по k :

$$k_{\pm} = k_L - \frac{\tilde{\Delta}_{\pm}}{L}, \quad \tilde{\Delta}_+ = -\operatorname{arccot} \left[\frac{\pi(T+t)}{JAI_s + F - E' + f} \right], \quad \tilde{\Delta}_- = \operatorname{arctan} \left[\frac{\pi(T-t)}{JAI_s + F - E' - f} \right], \quad (2.21)$$

$k_L = \pi n/L$, $n = 1, 2, 3, \dots$ – волновые вектора в отсутствии туннельной связи с локализованными состояниями. Для дискретных энергетических уровней имеем[61]:

$$\varepsilon_{\pm} = \varepsilon_L - \frac{\hbar^2 k_L \tilde{\Delta}_{\pm}(\varepsilon_L)}{mL} + O\left(\frac{1}{L^2}\right), \quad (2.22)$$

где $\varepsilon_L = \hbar^2 k_L^2/2m$.

Рассмотрим теперь антипараллельную конфигурацию спинов ионов $I_1 = -I_2 = I$. Дисперсионное уравнение (2.18) снова имеет два корня Z_1, Z_2 , но в отличие от предыдущего случая соответствующие волновые функции $\Phi_{1,2}$ не являются ни симметричными, ни антисимметричными, они могут быть представленный как суперпозиция симметричных и антисимметричных частей:

$$\Phi_{1,2} = c_+(Z_{1,2}) \Phi_+(Z_{1,2}) + c_-(Z_{1,2}) \Phi_-(Z_{1,2}), \quad (2.23)$$

где

$$\frac{c_+(Z)}{c_-(Z)} = \frac{F - E' - f + Z(T - t) + JAI s}{F - E' + f + Z(T + t) + JAI s},$$

и Φ_+, Φ_- задаются (2.20). Общее решение представляет собой линейную комбинацию Φ_1 и Φ_2 . Квантование в системе с конечным размером приводит к:

$$k_{1,2} = k_L - \frac{\Delta_{1,2}}{L}, \quad \Delta_1 = \arctan \left[\frac{\pi (F - E' + f) (T - t)}{(F - E')^2 - f^2 - (JAI s)^2} \right], \quad \Delta_2 = -\operatorname{arccot} \left[\frac{\pi (F - E' - f) (T + t)}{(F - E')^2 - f^2 - (JAI s)^2} \right]. \quad (2.24)$$

Учитывая дискретные энергетические уровни для параллельной и антипараллельной спиновой конфигураций ионов, энергия косвенного обмена может быть рассчитана путем суммирования разности энергий по всем заполненным состояниям. Используя (2.22), мы имеем:

$$E_{exc} = -\frac{1}{\pi} \sum_s \int_0^{E_F} \left[(\tilde{\Delta}_+ + \tilde{\Delta}_-) - (\Delta_1 + \Delta_2) \right] dE.$$

Вычисляя данное выражение и отбрасывая слагаемые более высокого порядка чем T^2 получим выражение для энергии косвенного обменного взаимодействия двух ионов:

$$E_{exc} = \frac{1}{\pi} \int_0^{E_F} \arctan \left[\frac{8\pi^2 T^2 j^2 J_0(kR) Y_0(kR)}{((\varepsilon - \varepsilon_0)^2 - j^2)^2} \right] d\varepsilon, \quad (2.25)$$

где $k = \sqrt{2m\varepsilon}/\hbar$, $j = |JAs|$.

2.2.2 Обсуждение

Как видно из (2.25) энергия взаимодействия E_{exc} осциллирует при изменении расстояния между примесями R . Аргумент арктангенса в (2.25) имеет полюсы $\varepsilon = \varepsilon_0 \pm j$, и результат сильно меняется в зависимости от положения резонансов, лежат они в пределах интегрирования или нет $\varepsilon \in [0, E_F]$. Если резонансные состояния заполнены, то энергия обменного взаимодействия оценивается как:

$$E_{res} \sim \sqrt{Tj}, \quad (2.26)$$

а период осцилляций: $\hbar/\sqrt{2m\varepsilon_0}$. Нерезонансный случай возникает, если $\varepsilon_0 \gg E_F$, $j \ll E_F$. Интегрирование (2.25) приводит к:

$$E_{nr} = \frac{8\pi T^2 j^2 E_F}{\varepsilon_0^4} \chi(R), \quad (2.27)$$

$$\chi(R) = J_0(k_F R) Y_0(k_F R) + J_1(k_F R) Y_1(k_F R).$$

Выражение (2.2.2) является тем, что можно было бы ожидать от традиционного подхода РККИ. Функциональная зависимость от R функции $\chi(R)$ точно такая же, как для 2D РККИ-взаимодействия без туннелирования [62], а префактор учитывает конкретную модель, которая используется для описания туннелирования и связанного примесного состояния. Величина энергии взаимодействия для резонансного случая оказывается существенно выше, чем для нерезонансного. Предполагая для обоих случаев $\varepsilon_0 \sim E_F$, можно оценить усиление энергии взаимодействия:

$$\gamma \equiv \frac{E_{res}}{E_{nr}} \sim \frac{\varepsilon_0^4}{8\pi T^{3/2} j^{3/2} E_F}. \quad (2.28)$$

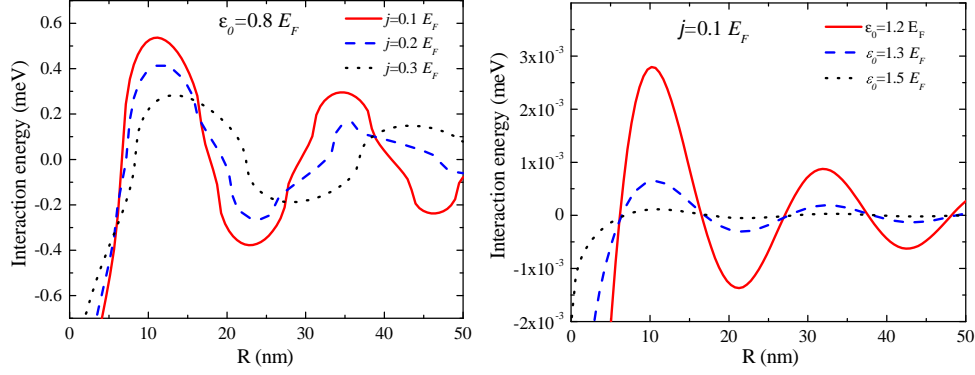


Рис. 2.1: Энергия косвенного обменного взаимодействия ионов как функция расстояния в резонансном случае (левый рисунок) и нерезонансном случае (правый рисунок).

Для оценки величины эффекта возьмем параметры для гетероструктур на основе InGaAs, изученных в [48, 63, 49]. Параметры $T \sim 0.01 E_F$, $j \sim 0.1 E_F$, тогда получим что γ может достигать величины в несколько сотен. На рис. 2.1 показан результат численного расчета согласно (2.25).

Область применимости полученного результата начинается с $R > r_0$ (для реальных структур $r_0 \sim 1$ нм. Возьмем $m = 0.1 m_0$ (m_0 - свободная масса электрона), $E_F = 10$ мэВ, $\epsilon_0 = 0.8 E_F$, поэтому для $j = 0.1 E_F$ оба резонанса лежат в пределах интегрирования $[0, E_F]$, для $j = 0.3 E_F$ только один резонанс находится в пределах интегрирования, и энергия взаимодействия уменьшилась. Случай $j = 0.2 E_F$ является промежуточным: один резонансов попадает точно в E_F . Нерезонансный случай показан в правой части рис. 2.1. Здесь для всех кривых оба резонанса $\epsilon = \epsilon_0 \pm j$ превышают E_F . Это существенно снижает величину энергии взаимодействия по меньшей мере на два порядка по сравнению с резонансным случаем, левая часть рис. 2.1.

2.2.3 Сравнение с экспериментом

В работах [64, 65, 66, 67] показано, что гетероструктура GaAs с Mn δ -слоем, расположенным в окрестности квантовой ямы $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, оказывается ферромагнитной при температурах порядка 20 К, подобно объемному РМП (Ga,Mn)As.

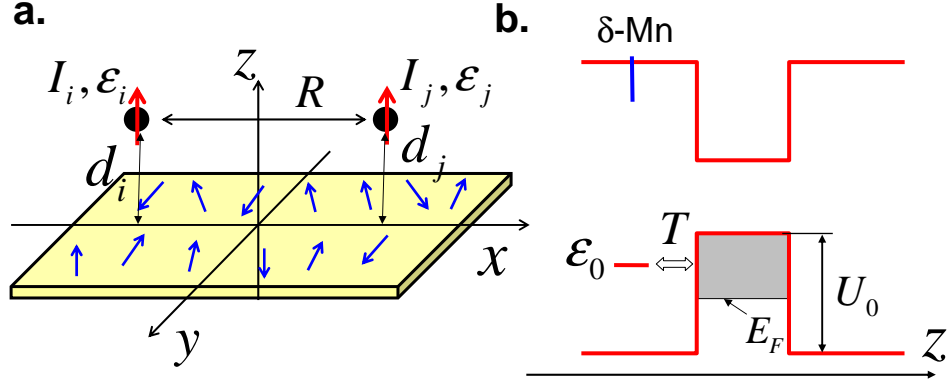


Рис. 2.2: Иллюстрация косвенного обменного взаимодействия по 2D-каналу (а) и зонной диаграммы гетероструктуры на основе квантовой ямы InGaAs и Mn δ -слоем (b).

Кроме того, было обнаружено, что ферромагнитные свойства зависят от глубины QW немонотонным образом [51]. Развитая выше теория предсказывает увеличение энергии обменного взаимодействия за счет резонансной туннельной связи локализованного состояния на магнитном ионе с континуумом делокализованных 2D-состояний в канале.

В настоящем разделе развитая теория резонансного косвенного обмена применяется для объяснения экспериментально наблюдаемой зависимости температуры Кюри от глубины КЯ.

Схематично, экспериментально исследованная структура изображена на рис. 2.2. Здесь $I_{i,j}$ - проекция спина i -го (j -го) магнитного иона, $\epsilon_{i,j}$ - энергия связанного состояния ионов, $d_{i,j}$ - расстояние между ионом и каналом. В отличие от предыдущего раздела, параметры магнитных центров, такие как энергия связанного состояния, расстояние до КЯ, не предполагаются одинаковыми. Из-за различного расстояния магнитных ионов до КЯ энергетический параметр туннелирования (2.16) для i -го центра будет равен:

$$T_i = \alpha U_0 e^{-2qd_i}, \quad (2.29)$$

где U_0 - высота потенциального барьера, отделяющего магнитные центры от канала, $q = \sqrt{2m_{\perp}U_0}/\hbar$, m_{\perp} - эффективная масса вдоль направления туннелирования, безразмерный параметр α зависит от особенностей канала и магнитного центра

(2.16). Энергия косвенного обмена для магнитных ионов, вычисленная аналогично предыдущему разделу, с различными параметрами дается следующим выражением:

$$E_{ij} = \frac{1}{\pi} \int_0^{E_F} d\varepsilon \arctan \left[\frac{8\pi^2 j^2 T_i T_j J_0(kR) Y_0(kR)}{((\varepsilon_i - \varepsilon)^2 - j^2)((\varepsilon_j - \varepsilon)^2 - j^2)} \right]. \quad (2.30)$$

Формула (2.30) справедлива как для резонансной, так и для нерезонансной туннельной связи. Резонансный случай соответствует энергии связанных состояний, лежащей в области энергий занятых состояний в 2D-канале:

$$\varepsilon_i, \varepsilon_j \in [0, E_F]. \quad (2.31)$$

В этом режиме основной вклад в обменную энергию (2.30) приходится на полюсы аргумента арктангенса и может быть оценен как

$$\begin{aligned} E_{ij} &\approx \gamma \sqrt{jT}, & \text{для } \beta > 1 \\ E_{ij} &\approx \gamma \beta \sqrt{jT}, & \text{if } \beta < 1 \\ \beta &= \frac{\sqrt{jT}}{|\varepsilon_i - \varepsilon_j|}, & T = \sqrt{T_i T_j}. \end{aligned} \quad (2.32)$$

Здесь γ задается следующим выражением:

$$\gamma = \sqrt{2\pi} [J_0(k_i R_{ij}) Y_0(k_i R_{ij}) + J_0(k_j R_{ij}) Y_0(k_j R_{ij})]^{1/4}, \quad (2.33)$$

где R_{ij} - расстояние между ионами. В отличие от стандартной теории РККИ, волновой вектор на Ферми поверхности k_F заменяется «резонансными» волновыми векторами, соответствующим локализованным состояниям: $k_i = \sqrt{2m\varepsilon_i}/\hbar$. Для рассматриваемой ниже экспериментальной ситуации параметр $\gamma \approx 1$ оказывается еще далеким от первого нуля осциллирующей функции. Аппроксимация (2.2.3) достаточно хорошая, как показано на рис. 2.3. Пунктирная кривая показывает энергию обменного взаимодействия рассчитанную согласно (2.30) для $\varepsilon_i = \varepsilon_j = \varepsilon_0$, тогда как сплошная кривая показывает приближение (2.2.3), предполагая $\gamma = 1$.

Применим теперь теорию резонансного обмена к гибридной гетероструктуре GaAs/Mn δ -слой/GaAs/In_xGa_{1-x}As/GaAs. Энергетическая диаграмма для этой

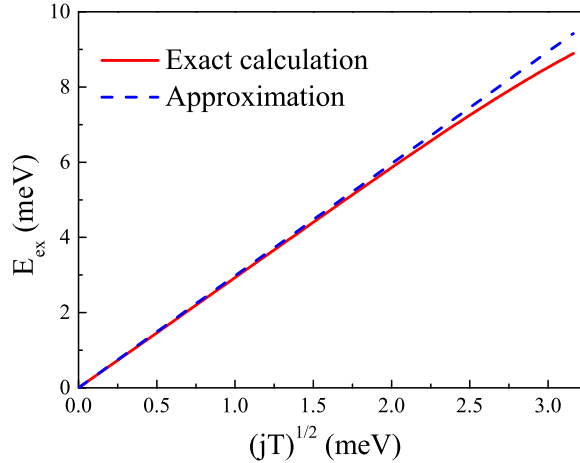


Рис. 2.3: Аппроксимация для энергии косвенного резонансного обмена (пунктирная линия) по сравнению с точным результатом (сплошная линия).

системы схематически показана на рис. 2.2(b). Содержание Mn составляет 0,25-0,3 монослоя, спейсер между слоем Mn и $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ КЯ равен $d = 3$ нм (при этом подвижность 2D-дырок в КЯ практически не изменилась при введении слоя Mn [50]), толщина КЯ составляет 10 нм, а ее глубина контролируется In концентрацией x . Из-за диффузии Mn в процессе роста толщина слоя Mn оказывается равной ≈ 3 нм [68], так что естественно ожидать, что ферромагнитные свойства такого слоя будут напоминать объемный ферромагнетизм $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$. Ферромагнетизм только в таком слое был установлен в [69]. Показано, что образцы, содержащие КЯ в дополнение к слою Mn, обладают ферромагнитными свойствами, которые немонотонно зависят от глубины КЯ [51]. Зависимость температуры Кюри от параметров КЯ предполагает, что косвенное обменное взаимодействие частично связано с 2D-дырами, расположенными в КЯ. Так же экспериментально доказано, что дырки в КЯ поляризованы по спину благодаря туннельной связи с Mn [52, 50, 70], поэтому естественно ожидать их участие в косвенном обмене между ионами Mn. Это взаимодействие необходимо принимать во внимание с учетом резонансной связи, как описано выше. Действительно, энергия связи акцептора Mn в GaAs сравнима с глубиной КЯ для дырок в широком диапазоне атомной доли In. Это позволяет выполнить условие (2.31) как показано на рис. 2.2(b), где ε_0 обозначает энергию

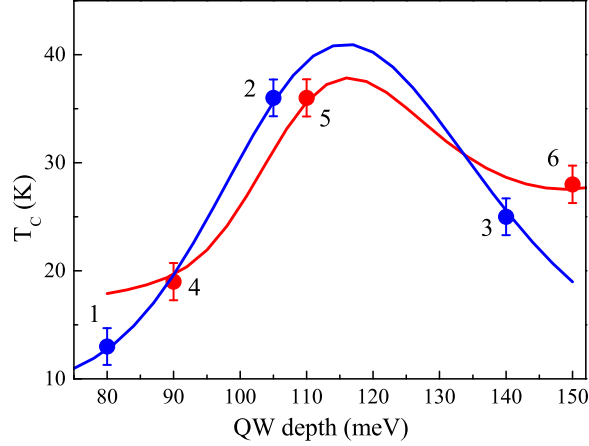


Рис. 2.4: Зависимость температуры Кюри от глубины КЯ. Эксперимент (кружки) и теоретический расчет (сплошные кривые).

связанного состояния дырки в Mn (нулевая энергия соответствует первому уровню квантования тяжелых дырок в КЯ). Сравним теперь рассчитанную величину температуры Кюри с экспериментальными данными [51] (кружки на рис. 2.4), предполагая, что есть два вклада в косвенное обменное взаимодействие между ионами Mn. Первый это внутренний ферромагнетизм самого Mn δ -слоя, возникающий из-за слабо локализованных дырок расположенных в слое, таким же образом, как и в объемном (Ga,Mn)As. Этот вклад не зависит от свойств КЯ. Вторым вкладом является резонансный косвенный обмен через 2D дырки КЯ. Максимум температуры Кюри соответствует резонансному косвенному обмену через 2D дырки КЯ, в то время как ее уменьшение для слишком мелкой, так и слишком глубокой КЯ объясняется выводом системы из резонанса (2.31). При оценке температуры Кюри предполагается, что T_C является суммой двух слагаемых:

$$T_C = T_{C1} + T_{C2}, \quad (2.34)$$

где T_{C1} не зависит от свойств КЯ. При вычислении второго слагаемого T_{C2} предполагается, что уровни локализованных состояний на ионах Mn распределены нормально со средним значением ε_0 и дисперсией σ_ε . Расстояние между соседними ионами считалось постоянным, равным среднему значению R . Для Mn δ -слоя в 0.3 монослоя можно оценить $R = 1.5$ нм. Было проверено, что учет распределения

расстояний, а также изменение среднего значения мало влияет на резонансный обменный вклад в температуру Кюри. Это связано с тем, что γ , определяемый (2.33), слабо меняется как функция R в окрестности $\gamma = 1$. Напротив, дисперсия энергии по распределению центров Mn играет важную роль и должна быть учтена. Для учета распределения уровней энергии при оценке температуры Кюри, удобно заменить аппроксимацию (2.2.3) аналогичной функцией:

$$\tilde{E}(\varepsilon_i, \varepsilon_j) = \frac{\gamma^2 j T}{|\varepsilon_i - \varepsilon_j| + \gamma \sqrt{j T}} \quad (2.35)$$

Резонансный вклад в температуру Кюри T_{C2} (2.34) вычисляется с использованием следующего выражения:

$$T_{C2} = \frac{2}{k_B} \int_0^{E_F} d\varepsilon \int_{-\infty}^{+\infty} d\varepsilon' P(\varepsilon) P(\varepsilon') \tilde{E}(\varepsilon, \varepsilon'), \quad (2.36)$$

где:

$$P(\varepsilon) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_\varepsilon} e^{-\frac{(\varepsilon - \varepsilon_0)^2}{2\sigma_\varepsilon^2}}. \quad (2.37)$$

В предельном случае δ -подобного распределения $\sigma_\varepsilon \rightarrow 0$ выражение (2.36) дает:

$$T_{C2} = \begin{cases} \frac{2}{k_B} \gamma \sqrt{j T}, & \varepsilon_0 \in [0, E_F] \\ 0, & \varepsilon_0 \notin [0, E_F] \end{cases}, \quad (2.38)$$

т. е. резонансный вклад исчезает, когда ε_0 оказывается ниже или выше диапазона энергий, занятых носителями в КЯ. Не резонансным вкладом, на несколько порядков более слабым, пренебрегается. Этот подход был использован для оценки экспериментальных значений температуры Кюри, измеренной для двух серий образцов. Образцы 1-3 имели 0.25 монослоя Mn и глубина КЯ для дырок U_0 варьировалась от 80 до 140 мэВ, образцы 4-6 имели 0.3 монослоя Mn с U_0 , варьирующимися от 90 до 150 мэВ. Сравнение теории и эксперимента показано на рис. 2.4. Для достижения наилучшего согласия с экспериментом, среднее значение энергии связанного состояния Mn равно $\varepsilon_0 = U_0 - 103$ мэВ, т.е. на 103 мэВ выше верхней части валентной зоны для GaAs, что примерно соответствует энергии связи акцептора Mn (≈ 110 мэВ). Это значение было одинаковым для двух серий образцов.

No	T_C , К	U_0 , meV	ρ , cm^{-2}	E_F , meV	T_{C1} , К	\sqrt{jT} , meV	σ_ε , meV
1	13	80	$5.6 \cdot 10^{11}$	7.8	9	3.3	18
2	36	105	$8.9 \cdot 10^{11}$	12.5	9	3.3	18
3	25	140	$1.8 \cdot 10^{12}$	25.2	9	3.3	18
4	19	90	$0.7 \cdot 10^{11}$	1.0	17	4.1	13
5	36	110	$3.0 \cdot 10^{11}$	4.2	17	4.1	13
6	28	150	$2.3 \cdot 10^{12}$	32.2	17	4.1	13

Таблица 2.1: Параметры для расчета T_{C2} .

Концентрация дырок (и их уровень Ферми) была получена из транспортных экспериментов [67], [50], а глубина КЯ была получена из оптических экспериментов. Эти значения приведены в таблице 1 вместе с другими параметрами. Другими параметрами были: нерезонансная компонента температуры Кюри T_{C1} , дисперсия энергии состояний σ_ε и произведение jT . Как видно из таблицы 1, для образцов 4-6 T_{C1} выше, чем для образцов 1-3, это согласуется с фактом их более слабого легирования марганцем. Большее произведение jT для более сильно легированных образцов можно понять, т.к. слой Mn имеет конечную толщину, которая, как ожидается, будет больше для большей концентрации марганца из-за диффузии Mn [67]. Таким образом, минимальное расстояние между слоем Mn и КЯ уменьшается с увеличением уровня легирования Mn, что приводит к увеличению параметра туннелирования. Как видно из рис. 2.4 имеется хорошее соответствие расчета с экспериментальными данными, и значения параметров подгонки кажутся вполне разумными. Также интересно проиллюстрировать соотношение между двумя вкладками в ферромагнетизм. На рис. 2.5 показаны два вклада как функция толщины спейсера d . Для расчета, представленного на рис. 2.5, взяты параметры образца 5 с разной толщиной спейсера. Внутренний вклад (T_{C1}) не зависит от d , а вклад КЯ зависит от d через параметр туннелирования. Для резонансного случая эта зависимость более слабая, чем для нерезонансного, T_C зависит как \sqrt{T} (2.2.3), а не T^2 (2.2.2), соответственно.

Другим объяснением наблюдаемых явлений могло быть перераспределение дырок между слоем Mn и КЯ. При этом немонотонная зависимость температуры

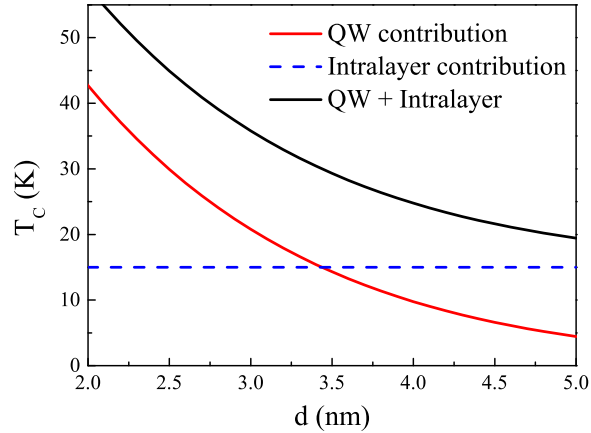


Рис. 2.5: Вычисленная зависимость температуры Кюри от расстояния между КЯ и Mn δ -слоем.

Кюри от концентрации дырок может быть связанна с примесной зоной, образовавшейся в (Ga,Mn)As. Оптимальный коэффициент заполнения для прыжков дырок внутри примесной зоны равен 0.5, поэтому, изменяя коэффициент заполнения от 1 до 0, можно было ожидать, что ферромагнетизм проявит немонотонное поведение с максимумом на полузаполненной примесной полосе [71]. Однако это объяснение было опровергнуто [72], немонотонная зависимость температуры Кюри не будет наблюдаться если учесть дефекты замещения As должным образом [73]. Более того, это объяснение предполагает радикальное изменение коэффициента заполнения примесной зоны, т.е. концентрация дырок в КЯ должна изменяться на величину концентрации в слое Mn. Концентрация дырок в КЯ в исследуемых образцах никогда не превышает $2.3 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2}$, а в слое Mn (с содержанием Mn 0.25-0.3 монослоя) она составляет не менее 10^{13} см^{-2} согласно измерениям (также подтверждается [69]). Таким образом, концентрация дырок в КЯ слишком мала, чтобы объяснить изменение температуры Кюри и ее немонотонное поведение этим механизмом.

2.3 Косвенное обменное взаимодействие магнитных адатомов в графене

В данном разделе анализируется парное косвенное обменное взаимодействие между магнитными адатомами через делокализованные носители в графене. Для нерезонансного случая, когда энергия связанного состояния не попадает в диапазон заполненных энергий 2D континуума этот расчет может быть выполнен в рамках обычной теории РККИ. Взаимодействие РККИ в графене ранее исследовалось теоретически [74, 75, 76, 77, 78, 79, 80, 81] и было показано, что если магнитные центры расположены в вершинах одной и той же подрешетки графена, взаимодействие является ферромагнитным, а в случае разных подрешеток он является антиферромагнитным. Для графена энергия взаимодействия [75, 76, 77, 79, 80, 74] уменьшается как $1/R^3$ с расстоянием R между примесями. Как будет показано ниже, в случае, если примесь имеет резонансное состояние, ситуация резко меняется. В резонансном случае энергия непрямого обменного взаимодействия значительно увеличивается, и тип взаимодействия (ферромагнитный или антиферромагнитный) может быть одинаковым как для конфигураций адатомов AA (одинаковые подрешетки графена), так и AB (разные подрешетки графена).

2.3.1 Теория

Рассмотрим два магнитных адатома, расположенных на поверхности графена, как показано на рис. 2.6. Магнитные адатомы имеют спины, обозначенные как I_1, I_2 и связанные состояния с уровнями энергии ϵ_1, ϵ_2 . Будем считать, что имеется туннелирование, приводящее к гибридизации связанных состояний адатомов и состояний непрерывного спектра графена.

Аналогично предыдущему разделу, выполним вычисления считая константу обменного взаимодействия электронов внутренней оболочки магнитных адатомов с локализованным электроном малой, но учитывая точно гибридизацию состояний графена и локализованного состояния. Для описания резонансного косвенного

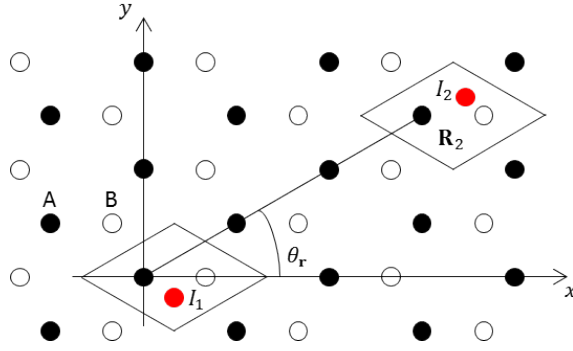


Рис. 2.6: Иллюстрация косвенного обменного взаимодействия адатомов, расположенных на графене. Черные и белые круги обозначают атомы углерода в двух разных подрешетках A и B соответственно. Параллелограммы показывают ячейки графена. Два адатома (показаны красными кругами) со спинами I_1, I_2 связаны как с подрешетками A, так и с B.

обмена в графене будем использовать следующий гамильтониан:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_T + \hat{H}_J, \quad (2.39)$$

где \hat{H}_0 описывает невзаимодействующие адатомы и графен, \hat{H}_T - туннельный гамильтониан, не зависящий от спина, \hat{H}_J описывает обменное взаимодействие между спином внутренней оболочки адатома и локализованного электрона на нем. Предполагается, что между адатомами нет прямого обменного взаимодействия. В случае слабой связи спины адатомов играют роль параметров, определяющих потенциал для электронов, поэтому гамильтониан (4.3) становится разным для параллельной и антипараллельной спиновой конфигурации адатомов. Разницу в энергии системы для параллельных и антипараллельных спиновых конфигураций магнитных адатомов можно интерпретировать как энергию косвенного обменного взаимодействия [77, 74, 78]:

$$E_{ex} = E_{\uparrow\uparrow} - E_{\uparrow\downarrow}. \quad (2.40)$$

Будем считать, что обменный гамильтониан \hat{H}_J описывается контактным взаимодействием в центрах адатомов между электронами их внутренней оболочки и локализованным электроном:

$$\hat{H}_J = A\delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_1)\hat{\mathbf{S}}\mathbf{I}_1 + A\delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_2)\hat{\mathbf{S}}\mathbf{I}_2, \quad (2.41)$$

где $\hat{\mathbf{S}}$ - оператор спина локализованного электрона, $\mathbf{I}_{1,2}$ - спины адатомов, A - константа обмена, $\mathbf{R}_{1,2}$ обозначают положения двух адатомов. Полный гамильтониан (4.3) в представлении вторичного квантования:

$$\begin{aligned}\hat{H}_0 &= \varepsilon_1 \hat{f}_1^+ \hat{f}_1 + \varepsilon_2 \hat{f}_2^+ \hat{f}_2 + v_F \sum_{\mathbf{p}} (|\mathbf{p}| \hat{c}_{\mathbf{p}K}^+ \hat{c}_{\mathbf{p}K} - |\mathbf{p}| \hat{d}_{\mathbf{p}K}^+ \hat{d}_{\mathbf{p}K} + |\mathbf{p}| \hat{c}_{\mathbf{p}K'}^+ \hat{c}_{\mathbf{p}K'} - |\mathbf{p}| \hat{d}_{\mathbf{p}K'}^+ \hat{d}_{\mathbf{p}K'}), \\ \hat{H}_T &= t_{1A} \hat{a}_{R_1}^+ \hat{f}_1 + t_{1B} \hat{b}_{R_1}^+ \hat{f}_1 + t_{2A} \hat{a}_{R_2}^+ \hat{f}_2 + t_{2B} \hat{b}_{R_2}^+ \hat{f}_2 + h.c., \\ \hat{H}_J &= \lambda_1 \hat{f}_1^+ \hat{f}_1 + \lambda_2 \hat{f}_2^+ \hat{f}_2.\end{aligned}\quad (2.42)$$

Здесь $\varepsilon_{1,2}$ энергии локализованных состояний, $\hat{c}_{\mathbf{p}K}^+$, $\hat{d}_{\mathbf{p}K}^+$, $\hat{c}_{\mathbf{p}K'}^+$, $\hat{d}_{\mathbf{p}K'}^+$, $\hat{c}_{\mathbf{p}K}$, $\hat{d}_{\mathbf{p}K}$, $\hat{c}_{\mathbf{p}K'}$, $\hat{d}_{\mathbf{p}K'}$ операторы рождения и уничтожения для электронов (c) и дырок (d) с импульсом \mathbf{p} в долинах K и K' , соответственно. v_F - скорость Ферми в графене, $\lambda_{1,2} = ASI_{1,2}|\varphi(0)|^2$, где S , $I_{1,2}$ проекции спинов электронов и адатомов, соответственно, $\varphi(0)$ волновая функция локализованного состояния адатома. Чтобы учесть туннельную связь каждого адатома с графеном, было введено два комплексных параметра t_{iA}, t_{iB} , $i = 1, 2$, описывающих туннельную связь i -го адатома с подрешеткой A и B графена, соответственно. При этом туннельная часть \hat{H}_T в (2.3.1) записывается в представлении реального пространства, $\hat{a}_{R_i}^+$, $\hat{b}_{R_i}^+$ - операторы рождения состояний в реальном пространстве в A и B подрешетке. Наряду с частью гамильтониана \hat{H}_0 (2.3.1), описывающей графен, туннельная часть должна быть переписана в импульсном представлении. Используя гамильтониан сильной связи [82] в реальном пространстве можно выразить операторы рождения и уничтожения в обратном k -пространстве следующим образом:

$$\begin{aligned}\hat{a}_{R_n} &= e^{-i\mathbf{K}\mathbf{R}_n} \sum_{\mathbf{p}} \frac{e^{-i\mathbf{p}\mathbf{R}_n}}{\sqrt{N}} e^{-i\theta_{\mathbf{p}}} \frac{\hat{c}_{\mathbf{p}}^K + \hat{d}_{\mathbf{p}}^K}{\sqrt{2}} + e^{-i\mathbf{K}'\mathbf{R}_n} \sum_{\mathbf{p}} \frac{e^{-i\mathbf{p}\mathbf{R}_n}}{\sqrt{N}} e^{i\theta_{\mathbf{p}}} \frac{\hat{c}_{\mathbf{p}}^{K'} + \hat{d}_{\mathbf{p}}^{K'}}{\sqrt{2}}, \\ \hat{b}_{R_n} &= -e^{-i\mathbf{K}\mathbf{R}_n} \sum_{\mathbf{p}} \frac{e^{-i\mathbf{p}\mathbf{R}_n}}{\sqrt{N}} \frac{\hat{c}_{\mathbf{p}}^K - \hat{d}_{\mathbf{p}}^K}{\sqrt{2}} - e^{-i\mathbf{K}'\mathbf{R}_n} \sum_{\mathbf{p}} \frac{e^{-i\mathbf{p}\mathbf{R}_n}}{\sqrt{N}} \frac{\hat{c}_{\mathbf{p}}^{K'} - \hat{d}_{\mathbf{p}}^{K'}}{\sqrt{2}},\end{aligned}\quad (2.43)$$

где \mathbf{R}_n - положение атома углерода в подрешетке A , $\theta_{\mathbf{p}}$ - полярный угол вектора импульса \mathbf{p} (система координат выбрана такая же, как в [82]). Будем считать,

что первый адатом расположен на начале координат $\mathbf{R}_1 = (0, 0)$, а второй адатом находится в точке $\mathbf{R}_2 = (x, y) = (r, \theta_{\mathbf{r}})$ в декартовой и полярной системе координат, соответственно.

Для диагонализации (4.3) будем использовать дискретный базис. В качестве дискретного базиса невозмущенных состояний графена возьмем состояния в листе в виде круга с радиусом L и с граничными условиями общего вида [83]:

$$\begin{aligned} \hat{\Gamma}_K &= \begin{pmatrix} 1 & i\beta e^{-i\theta_{\mathbf{R}}} \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, & \hat{\Gamma}_{K'} &= \begin{pmatrix} 1 & i\beta e^{i\theta_{\mathbf{R}}} \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \\ \hat{\Gamma}_K \psi_{p,n}^K(r, \theta_{\mathbf{R}}) \Big|_{r=L} &= 0, & \hat{\Gamma}_{K'} \psi_{p,n}^{K'}(r, \theta_{\mathbf{R}}) \Big|_{r=L} &= 0, \end{aligned} \quad (2.44)$$

здесь параметр β описывает границу, $\psi_{m,n}^K, \psi_{m,n}^{K'}$ - собственные функции графена в цилиндрическом базисе для долин K и K' (см. дополнение в этом разделе). Уровни энергии характеризуются радиальными и угловыми квантовыми числами m, n соответственно. Далее запишем гамильтониан (2.3.1) в матричной форме с использованием невозмущенных волновых функций графена и волновых функций связанных состояний адатомов. Этот гамильтониан может быть точно диагонализирован и тем самым найдены модифицированные уровни энергии. Разность энергий одного и того же числа электронов для различной спиновой конфигурации магнитных адатомов дает энергию их взаимодействия. В конце, с конечного диска переходим к бесконечному графеновому листу $L \rightarrow \infty$. Детали этого расчета представлены в Приложении.

Энергия косвенного обмена - это разница между параллельными и антипараллельными конфигурациями спинов адатомов, чтобы найти полную разность энергий следует суммировать разницу по всем занятым состояниям:

$$E_{ex} = \sum_{m,i} \sum_{s=\pm 1/2} [E_{m,i}(\uparrow\uparrow, s) - E_{m,i}(\downarrow\uparrow, s)], \quad (2.45)$$

где $m = 0, 1, 2, \dots$ и $i = 1, 2$ аналогичны радиальным и угловым квантовым числам соответственно, они характеризуют измененные уровни энергии (собственные значения (2.56)). Внешняя сумма берется по всем занятым энергетическим

состояниям. Также для каждой из конфигураций адатомов ($\uparrow\uparrow$ обозначает параллельную спиновую конфигурацию, $\uparrow\downarrow$ - для антипараллельной спиновой конфигурации) суммирование производится по проекции спина электронов s . Ниже сохраняем только ведущий порядок по параметру туннелирования. Как показано в Приложении, энергия косвенного обменного взаимодействия содержит быстрые осцилляции с характерным пространственным периодом $2\pi/K$, то есть с длиной углерод-углеродной связи, то же самое относится к обычному взаимодействию РК-КИ в графене [77, 79]. Произведем усреднение по этим короткомасштабным колебаниям, а также усредним по полярному углу описывающему положение адатомов (подробности см. в Приложении). Тогда получим для резонансного косвенного обменного взаимодействия в графене:

$$E_{ex} = \int_{-\infty}^{E_F} \frac{dE}{\pi} \arctan \left\{ \frac{\lambda^2 E^2 f(E, r)}{[(\varepsilon_1 - E)^2 - \lambda^2][(\varepsilon_2 - E)^2 - \lambda^2]} \right\} \text{sign}(E), \quad (2.46)$$

$$f(E, r) = \tau_{AA}^4 J_0 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) N_0 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) + \tau_{AB}^4 J_1 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) N_1 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right), \quad (2.47)$$

$$\tau_{AA}^4 = \frac{16}{3t^4} (t_{1A}t_{2A}^* + t_{1B}t_{2B}^*)(t_{1A}^*t_{2A} + t_{1B}^*t_{2B}), \quad \tau_{AB}^4 = \frac{16}{3t^4} (|t_{1A}|^2|t_{2B}|^2 + |t_{1B}|^2|t_{2A}|^2), \quad (2.48)$$

где $t \approx 2.8$ eV - энергетический параметр туннелирования между ближайшими атомами графена [82], J_i, N_i - функции Бесселя и Неймана i -го порядка, соответственно.

2.3.2 Обсуждение

Предположим для простоты, что связанные состояния адатомов имеют одну и ту же энергию, $\varepsilon_1 = \varepsilon_2 \equiv \varepsilon_0$. Для резонансного случая, когда энергия связанного состояния лежит внутри 2D спектра делокализованных состояний, $\varepsilon_0 \in (-\infty, E_F)$, из (2.46) энергия косвенного обмена может быть приблизительно оценена как:

$$E_{res} \sim T \sqrt{\lambda \varepsilon_0}, \quad T = (\tau_{AA}^4 + \tau_{AB}^4)^{1/4} \quad (2.49)$$

Рассмотрим нерезонансный случай и предположим, что энергия локализованного состояния лежит выше уровня Ферми, $\varepsilon_0 \gg E_F$. В этом случае аргумент арктан-

генса (2.46) не имеет полюсов и \arctan следует заменить его аргументом (из-за малости параметра туннелирования). Дальнейшие вычисления аналогичны рассмотренным в [75]. Так что в результате:

$$E_{nr} \approx \frac{\lambda^2}{\pi \varepsilon_0^4} \int_{-\infty}^0 dE E^2 f(E, r) = \frac{27}{128\pi} \frac{\lambda^2}{t} \frac{1}{(r/a)^3} \left(\frac{t}{\varepsilon_0}\right)^4 [-\tau_{AA}^4 + 3\tau_{AB}^4]. \quad (2.50)$$

Выражение (2.50) согласуется с ранее известными результатами обычной тео-

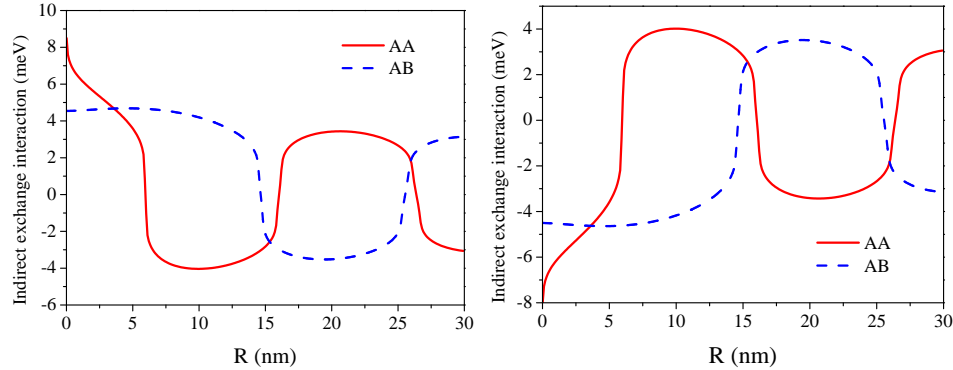


Рис. 2.7: Энергия косвенного обменного взаимодействия как функция расстояния между адатомами. Красная кривая - адатомы, расположенные на одной и той же подрешетке (AA), синяя пунктирная кривая - адатомы, расположенные на разных подрешетках (AB). (Левый рисунок) Энергия локализованного состояния равна $\varepsilon_0 = -100$ мэВ, ферми уровень равен $E_F = 0$ мэВ. (Правый рисунок) Энергия локализованного состояния равна $\varepsilon_0 = 100$ мэВ, ферми уровень равен $E_F = 110$ мэВ.

рии РККИ в графене [76, 77, 79, 81] с характерной зависимостью $E_{nr} \sim \lambda^2 T^4$. В металлах косвенное обменное взаимодействие типа РККИ обычно является ферромагнитным на малых расстояниях между магнитными примесями, в графене это зависит от положения адатомов. Как следует из (2.50), если оба адатома расположены в одной и той же подрешетке (AA или BB) взаимодействие является ферромагнитным, а для другой конфигурации подрешеток (AB, BA) оно является антиферромагнитным. Это согласуется с теорией РККИ в графене [79]. Однако для резонансного случая картина косвенного обменного взаимодействия существенно меняется по сравнению с традиционной теорией РККИ. Чтобы применить резонансную теорию косвенного обмена к реальным системам, необходимо

знать типичные значения параметров входящих в (2.46). Их можно оценить как $\lambda \sim 1 \div 10$ мэВ [59, 84], $T \sim 0.1 \div 1$ эВ [85, 86]. Эксперименты методом сканирующей туннельной микроскопии [86] показали, что адатомы кобальта имеют локализованное состояние при энергии $\varepsilon_0 \sim -100$ мэВ и уровень Ферми в графене может изменяться напряжением затвора в диапазоне $E_F \sim -300 \div 300$ мэВ [86]. На рис. 2.7 показано резонансное косвенное обменное взаимодействие как функция расстояния между адатомами, рассчитанными по формуле (2.46) для различных конфигураций адатомов (АА и АВ). Для этого расчета были взяты следующие значения: $\lambda = 1$ мэВ. Для конфигурации АА параметры туннелирования описывают связь адатомов только с одной подрешеткой (А) $t_{1A} = t_{2A} = 1$ эВ, $t_{1B} = t_{2B} = 0$. Для конфигурации (АВ) были взяты $t_{1A} = t_{2B} = 1$ эВ, $t_{1B} = t_{2A} = 0$. Проанализируем две разные ситуации, касающиеся положения связанного состояния, отчитанной от точки Дирака: (i) $\varepsilon_0 = -100$ мэВ, $E_F = 0$ мэВ, (ii) $\varepsilon_0 = 100$ мэВ, $E_F = 110$ мэВ. В обоих случаях выполняется условие резонанса. Случай (i) представлен в левой части на рис. 2.7. Отметим, что в отличие от обычной (нерезонансной) теории РККИ взаимодействие между адатомами является антиферромагнитным на малых расстояниях для конфигураций АА и АВ. Это связано с тем, что основной вклад в энергию обмена дают электроны с энергией близкой к энергии локализованного состояния и для небольшого расстояния оба члена в (2.47) оказываются одного знака. В случае (ii) уровень энергии связанного состояния лежит в зоне проводимости над точкой Дирака. Расчитанная энергия непрямого обмена представлена в правой части рис. 2.7. В этом случае для обеих конфигураций АА и АВ взаимодействие является ферромагнитным на небольшом расстоянии. Для обоих резонансных случаев (i) и (ii), рассмотренных выше, характерная длина колебаний определяется резонансной энергией: $\Lambda \sim a \cdot t/\varepsilon_0$, в то время как в обычной теории РККИ она связана с энергией Ферми $\Lambda \sim v_F/\varepsilon_F$.

Важной особенностью резонансного косвенного обмена является его величина, она может быть на несколько порядков выше по сравнению с нерезонансным слу-

чаем. Физическая причина такого усиления проста, резонансное туннелирование эффективно смешивает волновую функцию свободных носителей и локализованного состояния магнитного центра, где происходит обменное взаимодействие. Для графена естественным образом возникает идея об управлении его магнитными свойствами за счет изменения уровня Ферми и выполнению / невыполнению резонансного условия. Для иллюстрации этого эффекта, на рис. 2.8 построена энергия косвенного обменного взаимодействия от положения уровня Ферми в системе. Расстояние между адатомами, расположенными на одной и той же подрешетке (конфигурация AA), было постоянным и равно $R = |\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2| = 2$ нм, а энергия связанного состояния была взята $\varepsilon_0 = -100$ мэВ. Как видно из рис. 2.8, энергия косвенного обмена изменяется на несколько порядков при изменении положения уровня Ферми E_F на ~ 100 мэВ. Такая модуляция положения уровня Ферми может быть довольно легко достигнута путем приложения напряжения на затворе.

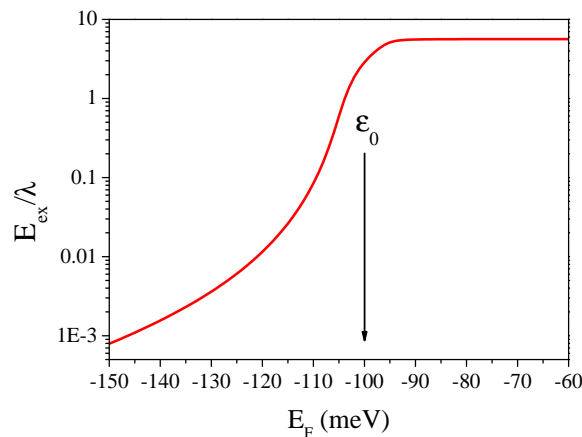


Рис. 2.8: Энергия косвенного обменного взаимодействия как функции положения уровня Ферми. Энергия локализованного состояния $\varepsilon_0 = -100$ мэВ, расстояние между адатомами равно $R = 2$ нм, конфигурация AA.

2.3.3 Дополнение

Вычисление собственных чисел

Задача состоит в нахождении собственных функций двух дискретных уровней взаимодействующих с континуумом, так называемой проблемой Фано-Андерсона [58]. Удобно использовать цилиндрический дискретный базис, так как граничные условия графена в этих координатах наиболее просты. Поместим систему в конечный цилиндрический "ящик" с радиусом L . Тогда можно взять за основу невозмущенные собственные функции графена используя любые граничные условия. Собственные функции графена в цилиндрическом базисе:

$$\begin{aligned}\psi_{p,n}^K(r, \theta_{\mathbf{R}}) &= \frac{\sqrt{p}}{2\sqrt{L}} \begin{pmatrix} J_n(pr) e^{in\theta_{\mathbf{R}}} \\ \pm i J_{n+1}(pr) e^{i(n+1)\theta_{\mathbf{R}}} \end{pmatrix} \\ \psi_{p,n}^{K'}(r, \theta_{\mathbf{R}}) &= \frac{\sqrt{p}}{2\sqrt{L}} \begin{pmatrix} J_n(pr) e^{in\theta_{\mathbf{R}}} \\ \mp i J_{n-1}(pr) e^{i(n-1)\theta_{\mathbf{R}}} \end{pmatrix},\end{aligned}\quad (2.51)$$

где верхний и нижний знак соответствует электронам и дырам, соответственно. Возьмем граничные условия для долин K и K' в общем виде как обсуждалось в [83]:

$$\begin{aligned}\hat{\Gamma}_K &= \begin{pmatrix} 1 & i\beta e^{-i\theta_{\mathbf{R}}} \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{\Gamma}_{K'} = \begin{pmatrix} 1 & i\beta e^{i\theta_{\mathbf{R}}} \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \\ \hat{\Gamma}_K \psi_{p,n}^K(r, \theta_{\mathbf{R}}) \Big|_{r=L} &= 0, \quad \hat{\Gamma}_{K'} \psi_{p,n}^{K'}(r, \theta_{\mathbf{R}}) \Big|_{r=L} = 0,\end{aligned}\quad (2.52)$$

здесь параметр β описывает границу. С помощью (2.52) мы получаем дискретные энергетические уровни для долин K и K' :

$$|E_{m,n}^0| = \hbar v_F \left(\frac{\pi m}{L} + \frac{\pi(2n+1)}{4L} \pm \arctan \frac{\beta}{L} \right), \quad (2.53)$$

где $+$ соответствует дырам, а $-$ соответствует электронам, m, n - целые числа, m - квантованная амплитуда импульса, n - цилиндрическое орбитальное число. Теперь рассмотрим полный гамильтониан (4.3), запишем его собственные функции $|\Psi\rangle$ как разложение:

$$|\Psi\rangle = (a_1 \hat{f}_1^+ + a_2 \hat{f}_2^+ + b_{pn}^{cK} \hat{c}_{pnK}^+ + b_{pn}^{dK} \hat{d}_{pnK}^+ + b_{pn}^{cK'} \hat{c}_{pnK'}^+ + b_{pn}^{dK'} \hat{d}_{pnK'}^+) |0\rangle, \quad (2.54)$$

где коэффициенты a_i, b_α^β подлежат определению. Индексы p, n характеризуют цилиндрические базисные состояния (2.51). Туннельные матричные элементы в цилиндрическом базисе (2.51) получаются из базиса плоских волн:

$$t_{1pn}^{cK} = i^{-n} \sqrt{\frac{\pi L p}{2}} \int_0^{2\pi} \frac{d\theta_{\mathbf{p}}}{2\pi} e^{-in\theta_{\mathbf{p}}} \langle 0 | \hat{f}_1 \hat{H}_T \hat{c}_{\mathbf{p}K}^+ | 0 \rangle. \quad (2.55)$$

Наконец, в базисе

$$(\hat{f}_1^+ | 0\rangle, \hat{f}_2^+ | 0\rangle, \{\hat{c}_{pnK}^+ | 0\rangle\}, \{\hat{d}_{pnK}^+ | 0\rangle\}, \{\hat{c}_{pnK'}^+ | 0\rangle\}, \{\hat{d}_{pnK'}^+ | 0\rangle\})$$

Гамильтониан (4.3):

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 + \lambda_1 & 0 & t_{1pn}^{cK} & t_{1pn}^{dK} & t_{1pn}^{cK'} & t_{1pn}^{dK'} \\ 0 & \varepsilon_2 + \lambda_2 & t_{2pn}^{cK} & t_{2pn}^{dK} & t_{2pn}^{cK'} & t_{2pn}^{dK'} \\ t_{1pn}^{cK*} & t_{2pn}^{cK*} & E_{pn}^{0c} & 0 & 0 & 0 \\ t_{1pn}^{dK*} & t_{2pn}^{dK*} & 0 & E_{pn}^{0d} & 0 & 0 \\ t_{1pn}^{cK'*} & t_{2pn}^{cK'*} & 0 & 0 & E_{pn}^{0c} & 0 \\ t_{1pn}^{dK'*} & t_{2pn}^{dK'*} & 0 & 0 & 0 & E_{pn}^{0d} \end{pmatrix}. \quad (2.56)$$

Детерминант соответствующей задачи на собственные значения можно свести к:

$$\begin{vmatrix} \varepsilon_1 + A_1 + \lambda_1 - E & B \\ B^* & \varepsilon_2 + A_2 + \lambda_2 - E \end{vmatrix}, \quad (2.57)$$

где

$$A_i = \sum_{m,n} \left(\frac{t_{ipn}^{cK} t_{ipn}^{cK*}}{E - E_{mn}^{0c}} + \frac{t_{ipn}^{dK} t_{ipn}^{dK*}}{E - E_{mn}^{0d}} + \frac{t_{ipn}^{cK'} t_{ipn}^{cK'*}}{E - E_{mn}^{0c}} + \frac{t_{ipn}^{dK'} t_{ipn}^{dK'*}}{E - E_{mn}^{0d}} \right), \quad (2.58)$$

$$B = \sum_{m,n} \left(\frac{t_{1pn}^{cK} t_{2pn}^{cK*}}{E - E_{mn}^{0c}} + \frac{t_{1pn}^{dK} t_{2pn}^{dK*}}{E - E_{mn}^{0d}} + \frac{t_{1pn}^{cK'} t_{2pn}^{cK'*}}{E - E_{mn}^{0c}} + \frac{t_{1pn}^{dK'} t_{2pn}^{dK'*}}{E - E_{mn}^{0d}} \right). \quad (2.59)$$

Суммирование в (2.58, 2.59) выполняется по всем базисным состояниям, $m, n = 0, 1, 2, \dots$. Квантованный импульс p в туннельном матричном элементе соответствует индексу m через условие квантования (2.52). Индексы c, d соответствуют электронам и дырам соответственно. Уравнение (2.58) описывает смещение уровней энергии адатомов из-за взаимодействия с носителями графена. В дальнейшем расчете изменим определение энергетических уровней связанных состояний как $\varepsilon_i + A_i \rightarrow \varepsilon_i$. Заметим, что сдвиг A_i имеет порядок T^2 и в нашем случае им можно

пренебречь. Уравнение (2.59) описывает взаимодействие между адатомами через электроны графена. Вычисляя (2.57), получаем:

$$(\varepsilon_1 + \lambda_1 - E)(\varepsilon_2 + \lambda_2 - E) - BB^* = 0, \quad (2.60)$$

$$B = \frac{\Omega_{u.c.} E}{4(\hbar v_F)^2} \left\{ \left(e^{i\mathbf{K}\mathbf{R}} + e^{i\mathbf{K}'\mathbf{R}} \right) (t_{1A} t_{2A}^* + t_{1B} t_{2B}^*) (N_0(kr) + J_0(kr) \cot(kL)) + \right. \\ \left. i \left[\left(e^{i\mathbf{K}\mathbf{r} - i\theta_r} + e^{i\mathbf{K}'\mathbf{r} + i\theta_r} \right) t_{1A} t_{2B}^* + \left(e^{i\mathbf{K}\mathbf{r} + i\theta_r} + e^{i\mathbf{K}'\mathbf{r} - i\theta_r} \right) t_{1B} t_{2A}^* \right] (N_1(kr) + J_1(kr) \cot(kL)) \right\}, \quad (2.61)$$

где $\mathbf{R} = \mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1$, $k = E/\hbar v_F$, $\Omega_{u.c.} = 3\sqrt{3}a^2/2$ - площадь элементарной ячейки графена, a - длина связи С-С, J_i, N_i - функции Бесселя и Неймана i -го порядка, соответственно. Площадь элементарной ячейки возникает из (2.3.1) и (2.55) как $L/N = \Omega_{u.c.}/2\pi L$. Корни характеристического уравнения (2.60) могут быть параметризованы индексами $E_{m,i}$, где m описывает абсолютное значение импульса в невозмущенном состоянии E_m^0 , $i = 1, 2$ определяет два решения (2.60) в соответствии с количеством рассматриваемых адатомов (два).

Точное выражения для резонансного косвенного обменного взаимодействия

В этом разделе приведем точный ответ для резонансного косвенного обменного взаимодействия получающегося из (2.60). Мы получили:

$$E_{ex} = \int_{-\infty}^{E_F} \frac{dE}{\pi} \arctan \left\{ \frac{\lambda^2 E^2 g(E, r)}{[(\varepsilon_1 - E)^2 - \lambda^2][(\varepsilon_2 - E)^2 - \lambda^2]} \right\} \text{sign}(E) \quad (2.62)$$

$$g(E, r) = \tau_{AA}^4 (1 + \cos(\mathbf{K} - \mathbf{K}') \mathbf{R}) J_0 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) N_0 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) + \\ + [\tau_{1AB}^4 (1 + \cos((\mathbf{K} - \mathbf{K}') \mathbf{R} - 2\theta_r)) + \tau_{2AB}^4 (1 + \cos((\mathbf{K} - \mathbf{K}') \mathbf{R} + 2\theta_r)) + \\ + 2\tau_{1AB}^2 \tau_{2AB}^2 \cos(\alpha_{1AB} - \alpha_{2AB})(\cos(\mathbf{K} - \mathbf{K}') \mathbf{R} + \cos(2\theta_r))] J_1 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) N_1 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) + \\ + [\tau_{AA}^2 \tau_{1AB}^2 \sin(\alpha_{AA} - \alpha_{1AB})(\cos((\mathbf{K} - \mathbf{K}') \mathbf{R} - \theta_r)) + \quad (2.63)$$

$$+ \tau_{AA}^2 \tau_{2AB}^2 \sin(\alpha_{AA} - \alpha_{2AB})(\cos((\mathbf{K} - \mathbf{K}') \mathbf{R} + \theta_r))] \cdot \\ \cdot \left(J_0 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) N_1 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) + J_1 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) N_0 \left(\frac{|E|r}{\hbar v_F} \right) \right), \quad (2.64)$$

$$\begin{aligned}\tau_{AA}^2 e^{i\alpha_{AA}} &= \frac{4}{\sqrt{3}t^2} (t_{1A}t_{2A}^* + t_{1B}t_{2B}^*), \\ \tau_{1AB}^2 e^{i\alpha_{1AB}} &= \frac{4}{\sqrt{3}t^2} t_{1A}t_{2B}^*, \quad \tau_{2AB}^2 e^{i\alpha_{2AB}} = \frac{4}{\sqrt{3}t^2} t_{1B}t_{2A}^*.\end{aligned}\tag{2.65}$$

Рассмотрим нерезонансный предельный случай. Предположим ($\varepsilon_0 \equiv \varepsilon_1 = \varepsilon_2$), $\varepsilon_0 \gg E_F$, для нелегированного графена возьмем $E_F = 0$. Проанализируем две конфигурации: (i) адатомы расположены на одной подрешетке $T_{AA} = t_{1A} = t_{2A}$, $t_{1B} = t_{2B} = 0$, (ii) адатомы расположены на различных подрешетках графена $T_{AB} = t_{1A} = t_{2B}$, $t_{2A} = t_{1B} = 0$. Для двух подрешеточных конфигураций имеем

$$E_{nr}^{AA} = -\frac{9}{8\pi} \frac{\lambda^2}{t} \frac{1 + \cos(\mathbf{K} - \mathbf{K}') \mathbf{R}}{(R/a)^3} \left(\frac{T_{AA}}{\varepsilon_0} \right)^4\tag{2.66}$$

$$E_{nr}^{AB} = \frac{27}{8\pi} \frac{\lambda^2}{t} \frac{1 + \cos((\mathbf{K} - \mathbf{K}') \mathbf{R} - 2\theta_r)}{(R/a)^3} \left(\frac{T_{AB}}{\varepsilon_0} \right)^4\tag{2.67}$$

Эти результаты (2.66, 2.67) описывают косвенное обменное взаимодействие в нерезонансном пределе и согласуются с полученными ранее результатами с использованием теории РККИ в графене [76, 77, 79, 80, 81], разница в предфакторе связана со спецификой рассматриваемой модели, в которой уровень связанного состояния существует и в нерезонансном случае. Заметим, что отсутствие фактора π в точном выражении для $g(E, r)$ (2.3.3) связан с разницей в угле $\pi/2$ в представленной в данной работе системе координат по сравнению с [77, 79]. Как можно видеть из (2.62), энергия косвенного обмена осциллирует с длиной атомного периода. Сделаем усреднение по этим короткомасштабным колебаниям:

$$\begin{aligned}\langle E_{ex} \rangle &= \int_0^{2\pi} \frac{d\gamma}{2\pi} E_{ex}(\gamma), \\ \gamma &= (\mathbf{K} - \mathbf{K}') \mathbf{R}.\end{aligned}\tag{2.68}$$

Этот интеграл нельзя вычислить аналитически, но можно пренебречь осциллирующими слагаемыми (т. е. $\cos(\gamma) \rightarrow 0$) в (2.3.3). Проверка ошибки, связанная с игнорированием этих слагаемых путем численного расчета (2.68) показала хорошее согласие, максимальная ошибка меньше 20% [81].

2.4 Краткие итоги

- Оценена температура Кюри в гетероструктурах GaAs с Mn δ -слоем, расположенным в окрестности квантовой ямы $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и ее зависимость от глубины квантовой ямы. Температура Кюри состоит из двух вкладов, первый связан с магнетизмом внутри слоя и не зависит от КЯ, второй - с косвенным обменным взаимодействием через дырки КЯ. Второй вклад имеет немонотонную зависимость от глубины КЯ, связанную с попаданием энергии локализованного состояния магнитного центра в энергетическую полосу заполненных состояний КЯ.
- Разработана теория косвенного обменного взаимодействия для магнитных адатомов, расположенных на поверхности графена. Наличие резонансных локализованных состояний в адатомах усиливает взаимодействие всякий раз, когда энергия состояния, связанного с адатомом лежит в области энергий занятых состояний в графене. Важным свойством резонансного косвенного обмена в графене является то, что, в отличие от нерезонансной теории РККИ в графене, тип взаимодействия (ферромагнитный или антиферромагнитный) является одинаковым независимо от типа связи адатомов с подрешетками А и В. Взаимодействие является ферромагнитным на небольших расстояниях, если уровень энергии связанного состояния лежит в зоне проводимости и антиферромагнитным для уровня энергии связанного состояния, лежащего в валентной зоне.

Глава 3

Гигантское магнетосопротивление в углеродных нанотрубках с одиночными магнитными молекулами TbPc₂

3.1 Введение

Молекулярная спинтроника [5, 87, 6, 88, 7, 8] ставит своей целью изучение способов характеризовать, манипулировать и считывать молекулярные спиновые состояния наносистем вплоть до уровня одной молекулы. Это может быть реализовано с использованием новейших оптических и электрических методов [89, 90, 91, 92, 93, 94, 95, 96, 97]. Дальнейшая миниатюризация устройств и необходимость эффективного взаимодействия органических и неорганических материалов для биомедицинских и нанoeлектронных применений являются движущими силами этого направления [9].

Одиночные магнитные молекулы (ОММ) обеспечивают перспективный способ реализации нанометровых структур со стабильной ориентацией спина [7]. Магнитные молекулы формируются внутренним магнитным центром окруженным органическими лигандами [98, 99]. Лиганды могут быть адаптированы для их связывания на поверхностях или в молекулярных соединениях [100, 101, 102, 103, 104, 105]. Делокализованные связи в молекулах могут улучшать их проводящие свойства,

а так же часто имеют функцию усиления магнитных взаимодействий ионов ядра. Разнообразие форм и размеров ОММ, а также возможность выбора лигандов позволяют адаптировать их для связи с окружающей средой [106]. Кроме того, магнитные свойства могут быть изменены путем замены магнитных ионов в молекулах [107]. Так же у ОММ имеется важное преимущество по сравнению с магнитными наночастицами: они чрезвычайно монодисперсны.

Важно отметить, что магнитные молекулы обладают впечатляющим разнообразием квантовых эффектов, наблюдаемых до очень высоких температур благодаря прогрессу молекулярных конструкций, варьируется от интерференции Берри и квантовой когерентности до квантового туннелирования намагниченности. Хотя изучение магнитных молекул уже привело к сильному влиянию на спинтронику [6], все же более яркие результаты ожидаются в ходе дальнейшего развития дизайна устройств на основе отдельных ОММ.

При контакте с наноструктурами магнитные молекулы могут сильно модифицировать их транспортные свойства. Замечательным примером такого эффекта является гигантское магнитосопротивление (ГМС), которое наблюдалось в углеродной нанотрубке (УНТ) с магнитными молекулами $TbPc_2$ на ее поверхности [91, 108, 109]. Эффект ГМС весьма привлекателен для различных применений, например датчиков магнитной памяти и т.д. Материалы с ГМС характеризуются размером структуры и отношением $[G(B) - G(0)]/G(0)$, где $G(B)$ и $G(0)$ обозначают проводимость в присутствии и отсутствии магнитного поля, соответственно. Воспроизводимые резкие скачки проводимости УНТ туннельно связанной с контактами, наблюдались при медленном изменении магнитного поля, которое ориентировало магнитные моменты молекул параллельно друг другу. Изменяя напряжение затвора, эффект ГМС в нанотрубках может достигать 1000 %. По своим проявлениям этот эффект спинового клапана аналогичен явлению ГМС в тонких металлических пленках с магнитными контактами, что, в свою очередь, является одним из наиболее известных и широко используемых на практике явлений в

области спинтроники.

Наноструктуры содержащие магнитные молекулы теоретически были рассмотрены в ряде работ. В частности, возможное считывание локальной ориентации спина через измерение спинового тока [110], асимметрии в "кулоновских ромбах" [111] и спин-блокадный эффект, связанный с изменением магнитной анизотропии [112]. Для однослойной УНТ с единственной присоединенной молекулой утверждалось, что туннельное магнитосопротивление может зависеть от обменного взаимодействия между УНТ и ОММ [113]. Тем не менее, ГМС и специфический нелинейный транспорт, наблюдаемый экспериментально в туннельно-связанных УНТ с несколькими магнитными молекулами, по-прежнему не имеют исчерпывающего теоретического объяснения.

В настоящей главе представлена теория электронного транспорта через углеродную нанотрубку с присоединенными одиночными магнитными молекулами $TbPc_2$ и обзор наблюдаемых экспериментальных данных. Предлагается теоретическая модель, которая объясняет связь следующих основных явлений: (i) спин-зависимое резонансное рассеяние проводящих электронов на связанном состоянии внутри молекулы (резонанс Фано) [58, 114, 115] и (ii) кулоновская блокада [116] внутри УНТ. В частности, электронные состояния на молекулах приводят к спин-зависимому резонансному подавлению прохождения электронов проводимости в УНТ. Кулоновское взаимодействие между электронами внутри нанотрубки приводит к кулоновской блокаде, при этом линейный транспорт блокируется для антипараллельной ориентации молекул спинов при всех значениях напряжения затвора. Разработанная теория предсказывает новое дальнодействующее взаимодействие между ОММ, которое отвечает за устойчивое магнитное упорядочение внутренних спинов молекул, и объясняет ГМС в нанотрубках с молекулами $TbPc_2$. Примечательно, что знак и сила спин-спинового взаимодействия молекул могут изменяться напряжением затвора. Это дает возможность управлять упорядочением спинов ОММ и как следствие магнитными свойствами молекулярных нано-

структур внешними напряжением затвора.

3.2 Структура одиночной магнитной молекулы TbPc₂

В данной части диссертационной работы исследуется влияние на транспортные свойства УНТ одиночных магнитных молекул, TbPc₂, см. рис. 3.1 (а). Молекула TbPc₂ состоит из иона тербия (III) обладающего 8-ю электронами на оболочке 4*f*, которые имеют полный момент импульса 3 и общий спин 3. Сильное спин-орбитальное взаимодействие приводит к полному моменту $J = 6$. Из-за взаимодействия иона металла с органическим лигандом, у ОММ появляется легкая ось. При низких температурах магнитный момент тербия имеет только две проекции на легкую ось, $J_z = \pm 6$, из-за сильной магнитной анизотропии, вызванной взаимодействием с двумя фталоцианиновыми (Pc) лигандами [117], рис. 3.1 (б).

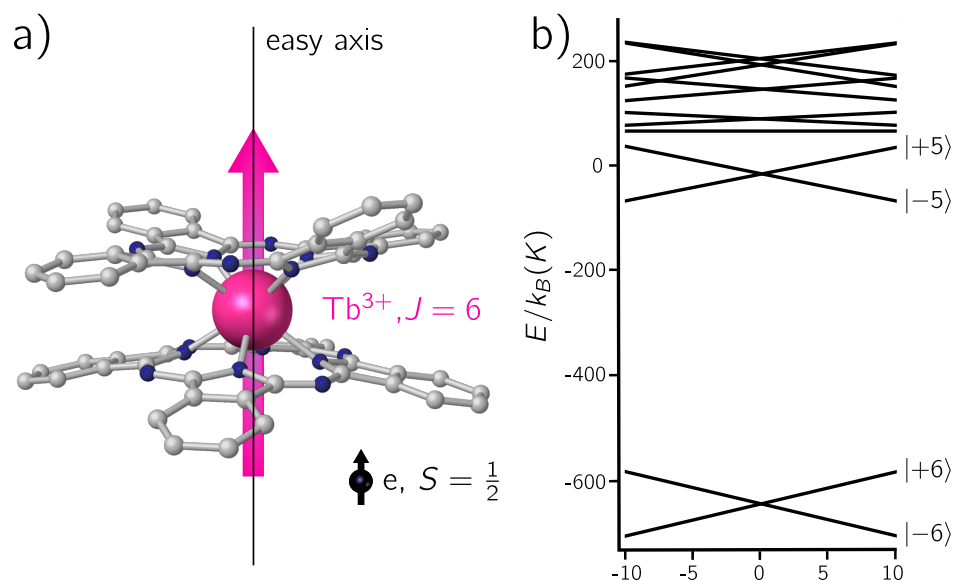


Рис. 3.1: а) Схема одиночной магнитной молекулы TbPc₂. Спины иона ($J = 6$) и «резидентного» электрона на лигандах ($S = 1/2$) показаны розовой и черной стрелками. (б) Энергетическая диаграмма TbPc₂ во внешнем магнитном поле, направленном в направлении легкой оси. Основное состояние имеет две спиновые проекции ± 6 .

Фталоцианиновые лиганды в TbPc₂ обладают электронным состоянием со спином $S = 1/2$ [99]. Из-за сильного кулоновского взаимодействия между частицами на лигандах с противоположными спинами [95] занята только одна ориентация

спина [118]. Этот локализованный спин S связан обменным взаимодействием [119] с спином J тербия $4f$ электронов.

3.3 Экспериментальные результаты

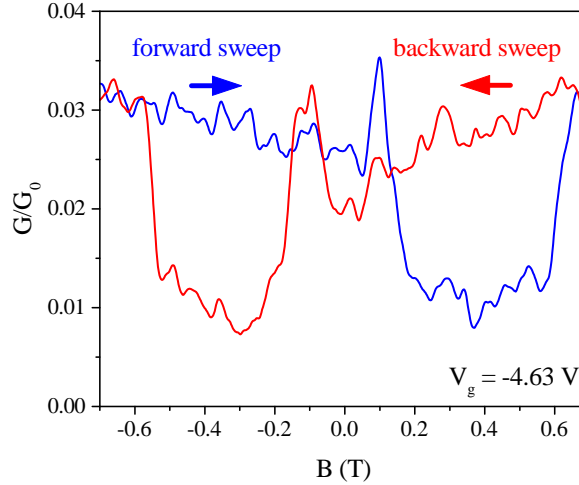


Рис. 3.2: Кондактанс в режиме линейного отклика при фиксированном напряжении затвора $V_g = -4.63$ В в единицах кванта проводимости G_0 в зависимости от динамически изменяемого магнитного поля (скорость изменения: $0,07$ Т/с). Синяя кривая: изменение от -0.7 Т до 0.7 Т; красная кривая: изменение в обратном направлении.

В этом разделе изложим наиболее важные экспериментальные результаты демонстрирующие эффект гигантского магнитосопротивления в линейном транспорте через УНТ, а также дифференциальную проводимость в режиме кулоновской блокады.

На рисунке 3.2 представлено типичное измерение проводимости в магнитном поле, которое изменялось во времени. Эти исследования выполнялись группой W. Wernsdorfera в университете Нееля во Франции. При фиксированном напряжении затвора ($V_g = -4.63$ В) и малом напряжении сток-исток (линейный отклик, $V_{sd} \rightarrow 0$), скорость изменения магнитного поля составляла 70 мТ·с $^{-1}$. Синяя кривая показывает проводимость для увеличения B от отрицательных значений до положительных, а красная кривая для изменения в противоположном направлении.

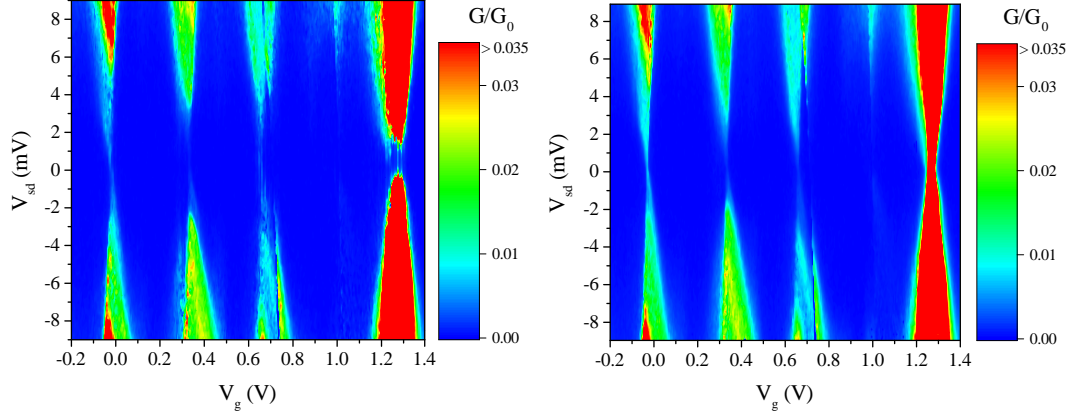


Рис. 3.3: Карта проводимости углеродной нанотрубки в режиме кулоновской блокады в плоскости напряжения сток-исток V_{sd} и напряжения затвора V_g , в нулевом магнитном поле (левый рисунок) и стационарном магнитном поле $B = 1$ Т (правый рисунок). Дифференциальная проводимость $G = dI/dV_{sd}$ задана в единицах кванта проводимости G_0 .

Асимметрия скачков проводимости по отношению к $B \rightarrow -B$ обусловлена конечной скоростью изменения магнитного поля. В отрицательных магнитных полях основное состояние спина Тб равно $J_z = +6$, см. рис. 3.1 (b). При достаточно быстром изменении магнитного поля спин молекулы продолжает оставаться в состоянии $J_z = +6$, которое при положительных магнитных полях соответствует возбужденному состоянию, пока не произойдет процесс релаксации, который переворачивает спин Тб. Основным источником релаксации связан со спин-фононной связью в молекуле ТбРс₂ [120]. В то же время при относительно низкой скорости изменения магнитного поля квантовое туннелирование намагниченности по механизму Ландау-Зенера становится наиболее важным [108] и наблюдается симметричная зависимость кондактанса по магнитному полю.

Карты дифференциальной проводимости в единицах кванта проводимости $G_0 = e^2/h$ в зависимости от напряжения сток-исток и напряжения затвора показаны на рисунке 3.3 для нулевого магнитного поля (левый рисунок) для статического магнитного поля $B = 1$ Т (правый рисунок). "Кулоновские алмазы" (от англ. Coulomb diamonds) на этих картах указывают наличие кулоновской блокады (КБ), вызванное сильным электрон-электронным взаимодействием электронов в УНТ.

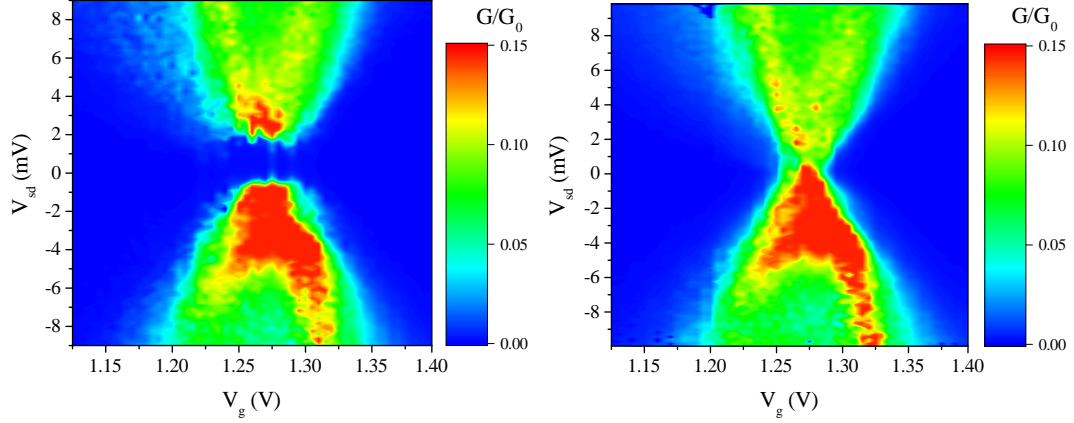


Рис. 3.4: Увеличенная карта кулоновской блокады около $V_g = 1.25$ В при нулевом магнитном поле (левый рисунок) и стационарном поле $B = 1$ Т (правый рисунок). Дифференциальная проводимость задается в единицах G_0 .

Из экстраполяции "кулоновских алмазов" до верхней границы области минимальной проводимости, можно оценить кулоновскую энергию в УНТ как $E_C \approx 20$ мэВ. Другое важное замечание состоит в том, что двумерные области проводимости на картах КБ пространственно довольно однородны, что указывает на то, что уширение одночастичных энергетических уровней в УНТ относительно велико.

Примечательно, что при нулевом магнитном поле (рис. 3.3, левый рисунок) проводимость в нуле V_{sd} подавляется для всех значений напряжений затвора V_g , и наблюдались щели (отсутствие) в проводимости при $\delta V_{sd} \sim 1 \div 2$ мэВ [91]. Это контрастирует с обычными картами КБ в квантовых точках [121], где линейная проводимость конечна при резонансных значениях V_g . На карте КБ, полученной в сильных магнитных полях (рис. 3.3, правый рисунок), щели в проводимости закрываются при определенных значениях напряжения затвора. Этот факт хорошо видно при увеличении карты кулоновской блокады для диапазона напряжений затвора около $V_g \sim 1.25$ В, показанной на рисунке 3.4, левый рисунок в нулевом магнитном поле, правый при $B = 1$ Т.

На рисунке 3.5 показана проводимость как функцию напряжения сток-исток при фиксированном напряжении затвора $V_g = 1.27$ В в присутствии и без магнитного поля. Этот график демонстрирует эффект ГМС порядка 1000 %: проводи-

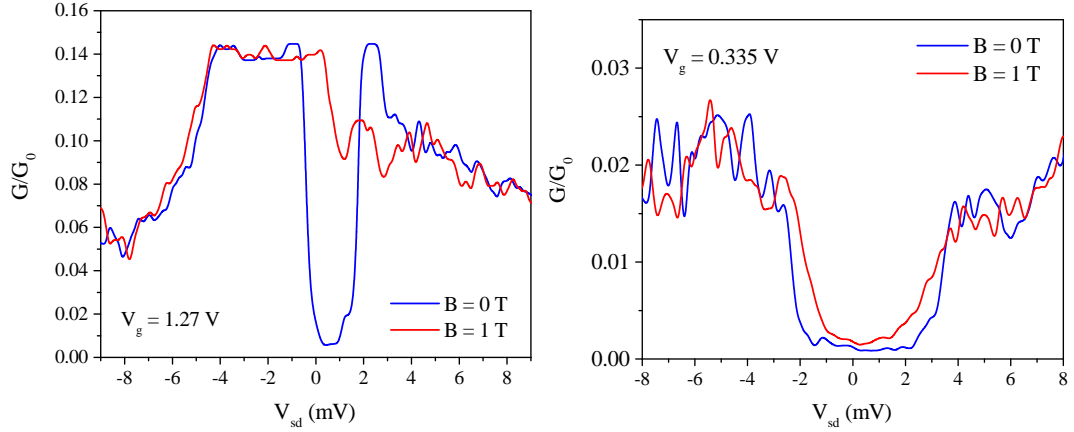


Рис. 3.5: Проводимость как функция напряжения сток-исток V_{sd} при фиксированном напряжении затвора $V_g = 1.27$ В (левый рисунок) и $V_g = 0.335$ В (правый рисунок) в единицах G_0 . Синяя кривая: $B = 0$; красная кривая: $B = 1$ Т.

мость падает от $G(B = 1 \text{ Т}) = 0.14 G_0$ до $G(B = 0) = 0.006 G_0$. Заметим, что центр области с низкой проводимостью сдвинут из $V_{sd} = 0$ вправо на $0.5 \div 1$ мэВ.

Помимо ГМС, наблюдаемого при $V_g = 1, 25 \div 1.3$ В, еще одной важной экспериментальной особенностью является наличие более слабого эффекта спинового клапана для других значений напряжения на рис. 3.3, например, для $V_g = 0.335$ В, как показано на рис. 3.5 (правый рисунок). Как с магнитным полем, так и без него проводимость имеет тот же порядок, что и проводимость в нулевом поле на левом рисунке 3.5. Подчеркнем, однако, что проводимость в отсутствии магнитного поля на правом рисунке 3.5 по-прежнему ниже проводимости при $B = 1$ Т. Таким образом, мы приходим к выводу, что экспериментально наблюдаемое магнитосопротивление зависит от напряжения затвора, т.е. является контролируемым затвором эффектом молекулярного спинового клапана.

В дальнейшем мы объясним происхождение ГМС и его зависимость от напряжения затвора.

3.4 Теория

3.4.1 Резонанс Фано в двухбарьерной структуре

Одиночная магнитная молекула TbPc₂ имеет делокализованное состояние на своих лигандах, которое было обнаружено измерениями спектров комбинационного рассеяния света [122] и найдено в различных расчетах методом теории функционала плотности [118, 115]. Когда магнитные молекулы прикреплены к УНТ, происходит туннелирование между электронными состояниями УНТ и состоянием, локализованным на лигандах, и эти состояния гибридизуются. Гибридизация состояний электронов проводимости с локализованным состоянием приводит к резонансу Фано [58, 114, 115], что сильно влияет на транспорт через УНТ с присоединенными молекулами.

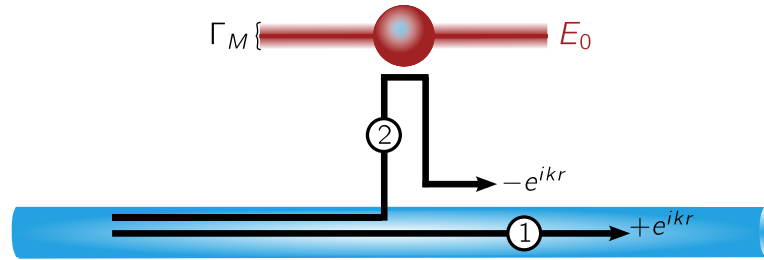


Рис. 3.6: Схематическая иллюстрация происхождения резонанса Фано при транспорте в бесконечном одномерном канале (трубке) с туннельно-связанным локализованным состоянием на молекуле (красный уровень). Деструктивная интерференция волн прошедших минуя молекулу (путь 1) и через состояние Фано (путь 2), приводит к полному подавлению прохождения для электронов с резонансной энергией ($E_k = E_0$).

Для рассмотрения этого явления, сначала рассмотрим случай одномерных электронов с параболическим спектром в одномерном бесконечном канале (рисунок 3.6) и без кулоновского взаимодействия между ними. Электроны в канале туннельно связаны с одним локализованным состоянием с энергией E_0 на присоединенной молекуле. Гамильтониан этой системы:

$$\hat{H} = E_0|\varphi\rangle\langle\varphi| + \sum_k (E_k|\psi_k\rangle\langle\psi_k| + t_k|\varphi\rangle\langle\psi_k| + t_k^*|\psi_k\rangle\langle\varphi|),$$

где E_0 - энергия локализованного состояния с соответствующей волновой функцией φ , $E_k = \hbar^2 k^2 / (2m)$ и ψ_k - энергия и волновая функция состояния k в одномерном канале, $t_k = \langle \varphi | \hat{T} | \psi_k \rangle$ - матричный элемент туннелирования Бардина [60]. Волновые функции φ и ψ_k предполагаются ортогональными друг другу.

В бесконечном канале амплитуды прохождения (t_M) и отражения (r_M) при рассеянии на локализованном состоянии на молекуле (индекс " M ") [114]:

$$t_M = \frac{E_k - E_M(k)}{E_k - E_M(k) + i\Gamma_M(k)}, \quad (3.1)$$

$$r_M = \frac{-i\Gamma_M(k)}{E_k - E_M(k) + i\Gamma_M(k)}, \quad (3.2)$$

где

$$E_M(k) = E_0 + \text{P.V.} \int_0^\infty dp \frac{|t_p|^2}{E_k - E_p}, \quad (3.3)$$

$$\Gamma_M(k) = \pi \int_0^\infty dp \delta(E_p - E_k) |t_p|^2. \quad (3.4)$$

В дальнейшем мы возьмем $E_M(k)$ и $\Gamma_M(k)$ в резонансной точке $k_0 = \sqrt{2mE_0/\hbar^2}$ и обозначим $E_0 = E_M(k_0)$ и $\Gamma_M = \Gamma_M(k_0)$. Масштаб энергии Γ_M описывает уширение уровня, локализованного на молекуле из-за связи между УНТ и молекулой. Видно, что состояние Фано подавляет прохождение в "окне" резонансных энергий $E_k \sim (E_0 - \Gamma_M, E_0 + \Gamma_M)$.

Блокировка транспорта за счет присоединенной молекулы связано с деструктивной интерференцией электронной волны, которая проходит без рассеяния, и волну, которая взаимодействует с молекулой и возвращается в канал (пути 1 и 2 на рисунке 3.6, соответственно). Непосредственно в резонансе $E_k = E_0$, фаза рассеяния для пути 2 равна π , что приводит к нулевому прохождению (сумма двух волн равна нулю: $e^{ikx} + e^{ikx+i\pi} = 0$). Соответственно, коэффициент отражения достигает максимума (единицы) в резонансе. В результате, присоединенная молекула действует как эффективный барьер, прозрачность которого зависит от энергии электронов.

Важность резонансов Фано для транспорта через нанотрубку с магнитными молекулами была указана в [115], но в этой статье рассмотрение было ограничено

случаем бесконечных (без туннельной связи с контактами) систем и не описывало полный набор экспериментальных наблюдений. Как будет показано ниже, решающим компонентом теоретической модели является кулоновская блокада, вызванная квантованием электронов в УНТ конечной длины с достаточно высоким контактным сопротивлением.

Важной экспериментальной особенностью является отсутствие выраженных уровней размерного квантования, однако оценки показывают, что они должны наблюдаться. Это свидетельствует о наличии сбоя фазы в проводящем канале. В связи с этим, для начала исследуем влияние сбоя фазы на одномерный транспорт без состояния Фано.

Рассмотрим простую систему с двумя барьерами, характеризующимися амплитудами прохождения / отражения $t_{L,R}, r_{L,R}$ и расстоянием между ними L , моделирующую УНТ с туннельными контактами. Амплитуда прохождения через двухбарьерную структуру может быть найдена суммированием по всем путям с прохождениями и отражениями на барьерах:

$$t = t_L e^{ikL} t_R + t_L e^{ikL} r_R e^{ikL} r_L e^{ikL} t_R + \dots = t_L t_R e^{ikL} \sum_{n=0}^{\infty} (r_L r_R e^{i2kL})^n = \frac{t_L t_R e^{ikL}}{1 - r_L r_R e^{i2kL}}. \quad (3.5)$$

Для моделирования сбоя фазы включим случайный потенциал $V_r(t)$ в гамильтониан. Это приведет к набору дополнительной фазы при движении частицы между барьерами, т.е. $r_L r_R e^{i2kL} \rightarrow r_L r_R e^{i2kL} e^{i\phi}$. Фаза ϕ случайна и имеет распределение:

$$P(\phi) = \frac{e^{-\frac{\phi^2}{4\gamma_\phi}}}{2\sqrt{\pi\gamma_\phi}}. \quad (3.6)$$

В рамках этой простой модели сбоя фазы амплитуда прохождения для данной реализации фаз ϕ_m определяется выражением:

$$t(\{\phi\}) = t_L t_R e^{ikL} \sum_{n=0}^{\infty} (r_L r_R e^{i2kL})^n e^{i\sum_{m=0}^n \phi_m}. \quad (3.7)$$

Теперь вычислим коэффициент прохождения $\mathcal{T} = |t|^2$ для двухбарьерной струк-

туры и усреднюю его по случайным фазам:

$$\langle \mathcal{T} \rangle = \int \prod_i d\phi_i P(\phi_i) t(\{\phi\}) t^*(\{\phi\}) = \frac{\mathcal{T}_L \mathcal{T}_R (1 - \mathcal{R}_L \mathcal{R}_R e^{-2\gamma_\phi})}{|1 - r_L r_R e^{i2kL - \gamma_\phi}|^2 (1 - \mathcal{R}_L \mathcal{R}_R)}. \quad (3.8)$$

Здесь $\mathcal{R}_{L,R} = |r_{L,R}|^2$, $\mathcal{T}_{L,R} = |t_{L,R}|^2 = 1 - \mathcal{R}_{L,R}$, и γ_ϕ характеризует сбой фазы. Без сбоя фазы ($\gamma_\phi = 0$) коэффициенты прохождения в резонансных энергиях \mathcal{T}_{res} и вдали от резонансов $\mathcal{T}_{\text{non-res}}$, сильно отличаются друг от друга для $\mathcal{T}_{L,R} \ll 1$:

$$\mathcal{T}_{\text{res}} = \frac{\mathcal{T}_L \mathcal{T}_R}{(1 - \sqrt{\mathcal{R}_L \mathcal{R}_R})^2} \approx \frac{4\mathcal{T}_L \mathcal{T}_R}{(\mathcal{T}_L + \mathcal{T}_R)^2}, \quad (3.9)$$

$$\mathcal{T}_{\text{non-res}} = \frac{\mathcal{T}_L \mathcal{T}_R}{(1 + \sqrt{\mathcal{R}_L \mathcal{R}_R})^2} \approx \frac{\mathcal{T}_L \mathcal{T}_R}{4}. \quad (3.10)$$

В противоположном случае сильного сбоя фазы $\gamma_\phi \gg 1$, найдем классический результат $\langle \mathcal{T} \rangle_{\text{class}}$ который может быть вычислен из кинетических/скоростных уравнений [121]:

$$\mathcal{T}_{\text{class}} = \frac{\mathcal{T}_L \mathcal{T}_R}{1 - \mathcal{R}_L \mathcal{R}_R} \approx \frac{\mathcal{T}_L \mathcal{T}_R}{\mathcal{T}_L + \mathcal{T}_R}. \quad (3.11)$$

Этот результат можно также получить, рассмотрев классическую частицу, распространяющуюся от одного барьера к другому с суммированием всех прохождений/отражений. Основным эффектом сбоя фазы является отсутствие сильных резонансов. В частности, для одинаковых сильных барьеров $\mathcal{T}_L = \mathcal{T}_R \ll 1$, уравнение (3.9) дает идеальное прохождение $\mathcal{T}_{\text{res}} = 1$, тогда как классический результат (3.11) дает $\mathcal{T}_{\text{class}} \ll 1$.

В качестве следующего шага вычисляем коэффициент прохождения через нанотрубку, связанную с контактами, в присутствии состояния Фано (верхняя панель на рисунке 3.7). Коэффициент прохождения при наличии сильного сбоя фазы может быть рассчитан классическим способом. Коэффициенты прохождения/отражения молекулы обозначаются как \mathcal{T}_M и \mathcal{R}_M и задаются квадратом модуля амплитуд (3.1) и (3.2) соответственно. Здесь предполагается, что типичное время \hbar/Γ_M , которое частица взаимодействует с локализованным состоянием Фано короче времени сбоя фазы и, следовательно, квантовая интерференция Фано

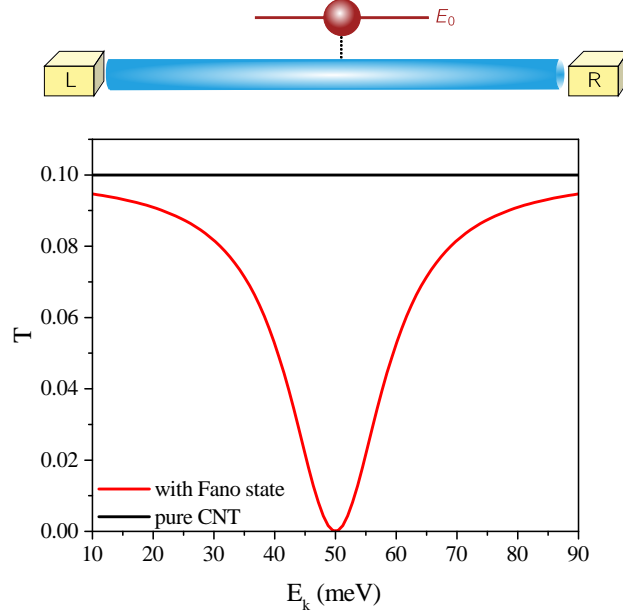


Рис. 3.7: (Верхняя панель) Схематическая иллюстрация одномерного канала, соединенного с контактами туннельными барьерами, с состоянием Фано. (Нижняя панель) Коэффициент прохождения для этой системы в зависимости от энергии электрона E_k в классическом случае (сильный сбой фазы). Красная кривая показывает прохождение \mathcal{T}_{BMB} для структуры с барьерами и одной молекулой, а черная показывает прохождение двух барьеров без молекулы (\mathcal{T}_{BB}). Используемые параметры: энергия локализованного состояния равна $E_0 = 50$ мэВ; коэффициенты прохождения контактов $\mathcal{T}_L = \mathcal{T}_R = 0,17$; гибридизация проводящих электронов с состоянием Фано характеризуется $\Gamma_M = 30$ мэВ.

не разрушается. Используя классическое выражение (3.11) для пропускания через двойную барьерную структуру мы сначала находим коэффициент пропускания и отражения составного рассеивателя, состоящего из левого барьера и молекулы:

$$\mathcal{T}_{LM} = \frac{\mathcal{T}_L \mathcal{T}_M}{1 - \mathcal{R}_L \mathcal{R}_M}, \quad (3.12)$$

$$\mathcal{R}_{LM} = \frac{\mathcal{R}_M + \mathcal{R}_L (\mathcal{T}_M - \mathcal{R}_M)}{1 - \mathcal{R}_L \mathcal{R}_M}. \quad (3.13)$$

Теперь вычислим коэффициент прохождения для всей структуры, заменив \mathcal{T}_L и \mathcal{R}_L на \mathcal{T}_{LM} и \mathcal{R}_{LM} в уравнениях (3.12) и (3.13),

$$\mathcal{T}_{BMB} = \mathcal{T}_{BB} \frac{(E_k - E_0)^2}{(E_k - E_0)^2 + \mathcal{T}_{BB} \Gamma_M^2}, \quad (3.14)$$

$$\mathcal{T}_{BB} = \frac{\mathcal{T}_L \mathcal{T}_R}{1 - \mathcal{R}_R \mathcal{R}_L}. \quad (3.15)$$

По сравнению с бесконечным каналом влияние двух барьеров в выражении (3.14) проявляется в двух аспектах. Во-первых, энергетическое окно в котором происходит подавление прохождения из-за эффекта Фано становится $E_k \sim (E_0 - \sqrt{\mathcal{T}_{BB}}\Gamma_M, E_0 + \sqrt{\mathcal{T}_{BB}}\Gamma_M)$. Во-вторых, вероятность прохождения \mathcal{T}_M умножается на коэффициент пропускания для двух барьерной структуры \mathcal{T}_{BB} . На нижней панели на рисунке 3.7 представлен коэффициент прохождения для УНТ с одним центром Фано.

Таким образом, присутствие состояния Фано существенно подавляет передачу по всей системе в диапазоне энергий $E_k \sim (E_0 - \Gamma_0, E_0 + \Gamma_0)$ вокруг резонанса E_0 ширины Γ_0 , управляемой как силой связи Γ_M , так и вероятностью прохождения \mathcal{T}_{BB} через двух барьерную структуру. При наличии двух и более молекул общая картина остается такой же: в области энергий Фано-резонанса, прохождение сильно подавлено. Другими словами, молекулы можно рассматривать как эффективные барьеры для электронов в данном энергетическом диапазоне. В то же время, вдали от резонанса Фано молекулы существенно не влияют на транспорт.

3.4.2 Учет спина: расщепление резонансов Фано

Перейдем теперь к обсуждению роли спина электрона и молекулы в транспорте через структуру нанотрубки с ОММ. Локализованные электронные состояния на Рс-лигандах магнитных молекул характеризуются большой кулоновской энергией U_0 . Другим важным фактом является наличие ферромагнитного обменного взаимодействия [119] между электроном, локализованным на лигандах и $4f$ -электронами тербия. Обменное взаимодействие описывается формулой

$$\hat{V}_{ex} = A(\hat{J}_z \cdot \hat{S}_z), \quad (3.16)$$

где J и S - спины тербия и локализованного электрона, соответственно. Здесь сразу учтено наличие легкой оси z у магнитной молекулы, ориентирующей спин тербия. Константа обменного взаимодействия A имеет значение около $-0,2$ мэВ. В этом случае мы можем записать энергию для электрона со спином вверх и вниз

на Pc (E_{\uparrow} и E_{\downarrow} соответственно), как

$$E_{\uparrow,\downarrow} = E_0 \pm AJ_z/2 + U_0 n_{\downarrow,\uparrow}. \quad (3.17)$$

Из-за сильного кулоновского взаимодействия U_0 электронов туннелирование на $TbPc_2$ не представляется возможным если ОММ уже занят электроном с противоположным спином. Направление спина локализованного электрона определяется спином Tb через обменное взаимодействие. Ориентация самого спина тербия будет обсуждаться позже. Из-за сильной магнитной анизотропии ОММ можно зафиксировать магнитный момент молекулы в одном направлении и проанализировать его влияние на рассеяние электронов. Схема, иллюстрирующая эти аспекты, представлена на рисунке 3.8.

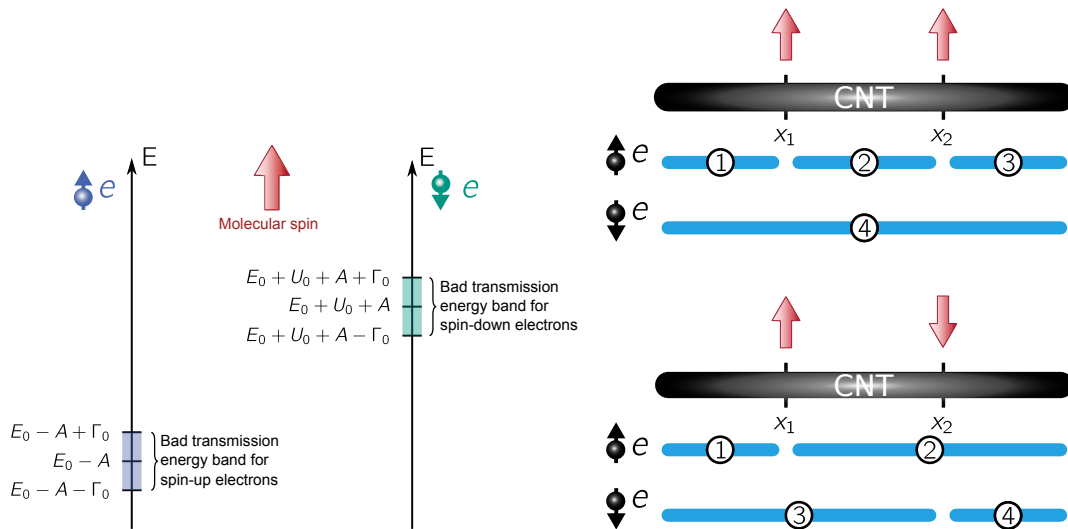


Рис. 3.8: (Левый рисунок) Схематическая диаграмма рассеяния электронов на $TbPc_2$. Когда электрон со спином вверх занимает локализованное состояние на лиганде, формируются две области подавленного прохождения для электронов за счет обменного взаимодействия со спином Tb . (Правый рисунок) Схема квантовых точек для электронов в УНТ с энергиями, близкими к энергии Ферми. УНТ эффективно разбивается на квантовые точки в зависимости от спиновой ориентации электронов и молекул. Уровень Ферми лежит в области подавленного прохождения для электронов со спином параллельным спину ОММ.

Прохождение электрона через молекулу с заданным спином J зависит от энергии электрона и его спина. В дальнейшем мы предполагаем следующую иерархию

энергетических масштабов в предлагаемой модели:

$$\Delta \ll E_C \lesssim \Gamma_0 \ll U_0. \quad (3.18)$$

Здесь Δ - это расстояние между уровнями в УНТ, $E_C \sim e^2/L$ - энергия кулоновского взаимодействия между электронами в УНТ. Для УНТ длины $L \sim 300$ нм одночастичное расстояние между уровнями размерного квантования составляет $\Delta \sim 1 \div 2$ мэВ, и кулоновская энергия равна $E_C \sim 15 \div 20$ мэВ. Уширение уровня Фано $\Gamma_0 \sim 10 \div 20$ мэВ можно оценить по карте проводимости через одну молекулу [119]. Это означает, что несколько уровней размерного квантования попадают в область с резонансным отражением. Величина кулоновской энергии на Рс-лигандах, $U_0 \sim 100$ мэВ, была рассчитана в работе [118].

Если уровень Ферми расположен, например, в энергетической полосе подавленного прохождения для электронов со спином вверх (см. левую часть рисунка 3.8), то одна молекула "расщепляет" нанотрубку на две квантовые точки (КТ) для этого типа носителей. Действительно, для электронов со спином вверх вблизи уровня Ферми (т.е. для тех электронов, которые задействованы в транспорте) существуют три барьера: два туннельных барьера, соединяющих УНТ с контактами, и эффективный барьер, созданный молекулой. В то же время носители со спином вниз вблизи уровня Ферми не чувствительны к присутствию одиночной молекулы и, следовательно, испытывают влияние только двух внешних туннельных барьеров, которые образуют одиночную КТ.

Поэтому для минимальной модели из двух молекул мы приходим к «эффекту спинового клапана», возникающего из-за зависящих от спина резонансов Фано. В частности, для антипараллельной ориентации двух спинов ОММ проводящие электроны с любой проекцией спина испытывают резонансное обратное рассеяние от ОММ, и транспорт подавляется для всех электронов. Когда спины молекул параллельны, проводящие электроны с одной проекцией спина "видят" два барьера Фано внутри УНТ и их прохождение заблокировано еще сильнее. Однако на электроны с противоположным спином ни одна из молекул не влияет, что должно

привести к более высокой проводимости системы.

Важной деталью является присутствие туннельных барьеров, разделяющих УНТ и контакты. В результате УНТ можно рассматривать как последовательность квантовых точек, число которых зависит от спинов носителей и молекул. В частности, параллельная ориентация двух спинов магнитных молекул на рисунке 3.8 приводит к трем КТ для носителей со спином вверх, в то время как носители с противоположным спином находятся в одной КТ. Для антипараллельных спинов ОММ носители как со спином вниз, так и спином вверх находятся в двух КТ, разделяемых одной из молекул.

"Расщепление" УНТ на квантовые точки изображено в правой части на рисунке 3.8. В дальнейшем предполагается, что уровень Ферми расположен в нижней энергетической зоне на левой части рисунка 3.8, т.е. прохождение через ОММ подавляется для носителей со спином, параллельным спину молекулы. Это предположение может быть выполнено изменением напряжения затвора, если емкости УНТ и молекулы не идентичны.

Важно подчеркнуть, что простая картина с спин-зависимым подавлением прохождения Фано-резонансов, представленных в правой части рисунка 3.8, не может объяснить все экспериментально наблюдаемые явления без учета кулоновского взаимодействия в КТ. Наличие нескольких КТ в системе сильно влияет на транспортные свойства структуры из-за зарядовых эффектов, характерных для кулоновской блокады. В частности, как будет показано ниже, кулоновское взаимодействие приводит к магнитному упорядочению спинов ОММ в нулевом магнитном поле, которое необходимо для объяснения эффекта спинового клапана и ГМС. Ниже подробно анализируются эффекты взаимодействия.

3.4.3 Кулоновская блокада: учет взаимодействия

Кулоновская блокада (КБ) наблюдалась в чистых УНТ (см., например [123]) и ее необходимо учитывать при анализе транспорта в нанотрубках с магнитными молекулами. Благодаря КБ, проводимость сильно подавляется для определенных

диапазонов напряжения затвора V_g и напряжения стока-истока V_{sd} , как показано на картах КБ на рисунках 3.3. Ниже будет построена карта КБ для исследуемой модели, где конфигурация КТ в УНТ определяется спинами ОММ.

Прежде чем перейти к обсуждению роли КБ в транспорте через УНТ с магнитными молекулами, кратко опишем основы КБ в простейшем случае одной квантовой точки. Кулоновское взаимодействие в конечной электронной системе приводит к появлению энергетического масштаба E_C , называемого зарядовой энергией. В процессе туннелирования электронов в квантовую точку условие сохранения энергии включает эту энергию взаимодействия. Как следствие, перенос заряда через квантовую точку может блокироваться кулоновским взаимодействием: чтобы пройти через точку, электрон должен преодолеть зарядовую энергию. В связи с этим, остановимся отдельно на вопросе расчета зарядовой энергии системы квантовых точек подключенных к внешним затворам.

Свободная энергия системы квантовых точек

Обсудим общий подход вычисления свободной энергии электростатически связанной системы квантовых точек [124]. Важно подчеркнуть, что электростатическая энергия КТ (т.е., сумма всех энергий конденсаторов в эквивалентной электрической схеме [116]) не может быть непосредственно использована для анализа транспортных свойств. Это обусловлено изменениями окружения системы, когда число электронов в КТ изменяется из-за переноса заряда, и связано с процессами в батареях (источниками напряжения затвора и сток-исток), в которых изменяется заряд конденсаторов при протекании тока. Чтобы вычесть работу, выполняемую источниками напряжения, нам нужно вычислить свободную энергию КТ в терминах числа электронов на КТ, N_i , напряжения затвора и напряжения сток-исток. Опишем систему, состоящую из КТ и «среды», эквивалентной электростатической схемой на рис. 3.9. Полная электростатическая энергия системы определяется вы-

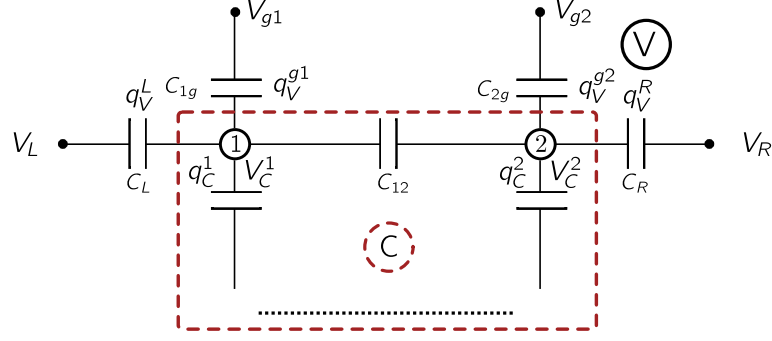


Рис. 3.9: Эквивалентная схема связанных квантовых точек. Внутренняя и внешняя области, обозначенные символами «С» и «V», соответствуют КТ и «среде».

ражением

$$E = \frac{1}{2} [\mathbf{V}_c \mathbf{Q}_c + \mathbf{V}_v \mathbf{Q}_v], \quad (3.19)$$

где \mathbf{V}_c и \mathbf{Q}_c - напряжение и заряд КТ, \mathbf{V}_v и \mathbf{Q}_v напряжение и заряд конденсаторов окружающей среды (затворы и выводы сток-истока), см. рис. 3.9. Напряжения на КТ можно найти из соотношения

$$\mathbf{Q}_c = \hat{\mathbf{C}}_{cc} \mathbf{V}_c + \hat{\mathbf{C}}_{cv} \mathbf{V}_v. \quad (3.20)$$

Диагональные элементы $\hat{\mathbf{C}}_{cc}$ задаются суммой емкостей всех конденсаторов, подключенных к конкретному узлу

$$(\hat{\mathbf{C}}_{cc})_{ii} = \sum_j C_{ij},$$

в то время как недиагональные элементы задаются емкостью (взятой со знаком минус) конденсатора, который соединяет два узла,

$$(\hat{\mathbf{C}}_{cc})_{ij} = -C_{ij}.$$

Произведение $\hat{\mathbf{C}}_{cv} \mathbf{V}_v$ содержит все напряжения, умноженные на емкости, соединяющие узлы со средой:

$$(\hat{\mathbf{C}}_{cv} \mathbf{V}_v)_i = \sum_j C_{ij} V_v^j.$$

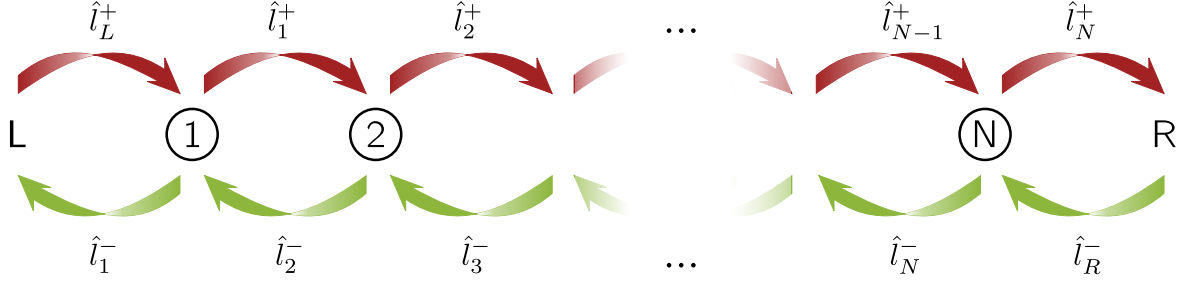


Рис. 3.10: Иллюстрация транспорта в структуре КТ. Операторы \hat{t}_j^\pm обозначают туннелирование электрона от одной точки к другой.

Работа батарей связана с изменением \mathbf{Q}_v при процессе переноса электрона через систему:

$$dA = \mathbf{V}_v d\mathbf{Q}_v, \quad d\mathbf{Q}_v = \hat{\mathbf{C}}_{vc} d\mathbf{V}_c. \quad (3.21)$$

Тогда полный дифференциал свободной энергии определяется

$$dF = dE - dA = \frac{1}{2} d[\mathbf{V}_c \mathbf{Q}_c + \mathbf{V}_v \mathbf{Q}_v] - \mathbf{V}_v d\mathbf{Q}_v. \quad (3.22)$$

Свободная энергия системы КТ:

$$F(\{N\}_i, V_g, V_{sd}) = \frac{1}{2} \mathbf{V}_c \hat{\mathbf{C}}_{cc} \mathbf{V}_c, \quad (3.23)$$

$$\mathbf{V}_c = \hat{\mathbf{C}}_{cc}^{-1} (\mathbf{Q}_c - \hat{\mathbf{C}}_{cv} \mathbf{V}_v). \quad (3.24)$$

Электронный транспорт в системе квантовых точек

Расчет тока через систему КТ требует решения задачи квантового туннелирования, если сбой фазы в системе мал или решить кинетическое уравнение в случае эффективного сбоя фазы. Однако для построения карты Кулоновской блокады достаточно найти число открытых транспортных каналов как функцию напряжения затвора и истока-стока.

Рассмотрим систему состоящую из N КТ, показанную на рис. 3.10. Будем производить расчеты в пространстве чисел электронов в КТ $\{N\}_i = (N_1, N_2, \dots, N_N)$, где i обозначает базисный вектор i . Сначала получим условия протекания тока для фиксированного числа частиц $\{N\}_i$ в КТ. Слева и справа заданы химические

потенциалы $\mu_L = eV_L$, $\mu_R = eV_R$ контактов, соответственно. Контакты симметричны относительно добавления и удаления частиц. Процесс прохождения электрона слева направо должен быть энергетически выгодным на каждом шаге. На первом шаге частица туннелирует из левого контакта в первую КТ. Удаление частицы из левого контакта приводит к уменьшению энергии системы на химический потенциал контакта по его определению. Изменение числа электронов в первой КТ приводит к изменению энергии связанной с заменой аргумента с $\{N\}_i$ на $\{N\}_i + 1_1$ в свободной энергии, где $\pm 1_j$ означает увеличение/уменьшение количества электронов на 1 на j квантовой точке.

Сумма этих двух вкладов $\Delta E_{L \rightarrow 1}$ - это изменение энергии системы, которая должна быть отрицательной для возникновения транспорта, см. (3.25). На следующем этапе электрон туннелирует из первой КТ на вторую. Этот процесс изменяет энергию системы на $\Delta E_{1 \rightarrow 2}$, которая задается разностью свободных энергий с $\{N\}_i + 1_2$ и $\{N\}_i + 1_1$, выражение (3.26). Это повторяется до N -той КТ. Последний процесс, $\Delta E_{N \rightarrow R}$, задается туннелированием частицы из последней КТ в правый контакт. Этот шаг приводит к разности свободной энергии и возрастанию на химический потенциал в правом контакте, μ_R , см. выражение (3.27). Различия в энергиях в явном виде имеет вид:

$$\Delta E_{L \rightarrow 1}(\{N\}_i) = -\mu_L + F(\{N\}_i + 1_1) - F(\{N\}_i) < 0, \quad (3.25)$$

$$\Delta E_{1 \rightarrow 2}(\{N\}_i) = F(\{N\}_i + 1_2) - F(\{N\}_i + 1_1) < 0, \quad (3.26)$$

...

$$\Delta E_{N \rightarrow R}(\{N\}_i) = \mu_R + F(\{N\}_i) - F(\{N\}_i + 1_N) < 0. \quad (3.27)$$

В дальнейшем мы опустим аргументы V_g , V_L , V_R в свободной энергии, чтобы упростить обозначения. Сумма всех разностей энергии $\Delta E_{j \rightarrow j+1}$ равна $\mu_R - \mu_L$, т.е. разность энергий электрона, перенесенного слева направо.

Определим транспортный канал в терминах базисного вектора $\{N\}_i$ состоящий

из чисел частиц, как:

$$J_{L \rightarrow R}(\{N\}_i) = \Theta(\Delta E_{L \rightarrow 1}) \Theta(\Delta E_{1 \rightarrow 2}) \cdots \Theta(\Delta E_{N \rightarrow R}) = \prod_j \Theta(\Delta E_{j \rightarrow j+1}),$$

где $\Theta(x) = 1 - \theta(x)$, с $\theta(x)$ ступенчатой функцией Хевисайда и $\{j\} = (L, 1, 2, \dots, N, R)$ перечисляет контакты и КТ, задействованные в канале. Значение $J_{L \rightarrow R}(\{N\}_i)$ равно нулю, если ток не может течь через состояние $\{N\}_i$ и равен единице в противоположном случае. Туннелирование электрона справа налево дается аналогичной формулой $J_{R \rightarrow L}(\{N\}_i)$ и вносит вклад в общий ток.

Теперь нам нужно найти соответствующие состояния $\{N\}_i$, которые могут создавать ненулевой ток. Операторы, описывающие эволюцию базисных состояний $\{N\}_i$, определяются следующим образом:

$$\hat{l}_j = 1 + \Theta(\Delta E_{j \rightarrow j+1}) \hat{P}_{j+1}^+ \hat{P}_j^- + \Theta(\Delta E_{j \rightarrow j-1}) \hat{P}_{j-1}^+ \hat{P}_j^- = 1 + \hat{l}_j^+ + \hat{l}_j^-, \quad (3.28)$$

$$\hat{P}_j^\pm \{N\}_i = \{N\}_i \pm 1_j, \quad \hat{P}_{L,R}^\pm = 1, \quad \hat{l}_L^- = \hat{l}_R^+ = 0. \quad (3.29)$$

Здесь оператор \hat{P}_j^\pm меняет число электронов в j -той КТ на единицу, операторы \hat{l}_j^\pm описывают туннелирование электрона из j -той КТ в одну из соседних КТ и $P_{\{N\}}$ - вектор в пространстве электронных чисел, т.е. $P_{\{N\}}(i) = \{N\}_i$. Состояния, на которых нужно вычислить ток, $P_{\{N\}}^0$, являются всеми возможными вариациями состояния, которое минимизирует свободную энергию при фиксированном затворе и напряжении источника-стока:

$$\begin{aligned} \min_{\{N\}} F(\{N\}) &= F(P_{\{N\}}^{\min}(i_{\min})), \\ \hat{\mathcal{L}} &= \sum_j \hat{l}_j, \\ \lim_{m \rightarrow \infty} \hat{\mathcal{L}}^m P_{\{N\}}^{\min} &= P_{\{N\}}^0. \end{aligned} \quad (3.30)$$

Наконец, общий ток выражается через все транспортные каналы, что дает

$$\mathcal{I}(V_g, V_{sd}) = \sum_i P_{\{N\}}^0(i) [J_{L \rightarrow R}(\{N\}_i) + J_{R \rightarrow L}(\{N\}_i)]. \quad (3.31)$$

При низких температурах и положительном смещении напряжения сток-исток, $\mu_L > \mu_R$, ток течет только слева направо, $J_{L \rightarrow R}$. Обобщение этого метода при наличии нескольких каналов осуществляется путем суммирования по всем каналам в последнем уравнении.

Электронный транспорт через одиночную и двойную КТ

На рисунке 3.11(а) показана эквивалентная электростатическая схема для одной квантовой точки. Ее свободная энергия (для нулевого напряжения сток-исток V_{sd}) дается следующим выражением:

$$F_1(N, V_g) = \frac{(eN + C_g V_g)^2}{2(C_g + C_L + C_R)}, \quad (3.32)$$

где N - число электронов на точке, C_g - емкость между точкой и затвором, а $C_{L,R}$ - емкости между точкой и контактами. В режиме линейного отклика т.е. для $V_{sd} \rightarrow 0$, меняя количество электронов в КТ, в общем случае получаются разные значения свободной энергии,

$$F_1(N) < F_1(N + 1), F_1(N - 1),$$

и электроны не могут туннелировать через КТ.

Однако для некоторых «резонансных» значений напряжения затвора V_g^* добавление дополнительного электрона в КТ не приводит к изменению свободной энергии: $F(N, V_g^*) = F(N + 1, V_g^*)$. Линейная проводимость, в пределе $V_{sd} \rightarrow 0$, через КТ отлична от нуля для этих значений V_g . Для конечного напряжения сток-истока резонансные условия для свободной энергии системы описываются границами «кулоновских алмазов» на карте кулоновской блокады с запрещенными (кулоновскими) областями, показанными синим цветом на рисунке 3.11(с). Когда изменение N в процессе туннелирования в КТ и из КТ соответствует уменьшению свободной энергии (с сохранением энергии при неупругом рассеянии), ток через систему может быть конечным (красные области на рисунке 3.11(с)).

Теперь обсудим принципиальную разницу между транспортом через одиночную КТ и две или более КТ, которая является краеугольным камнем эффекта

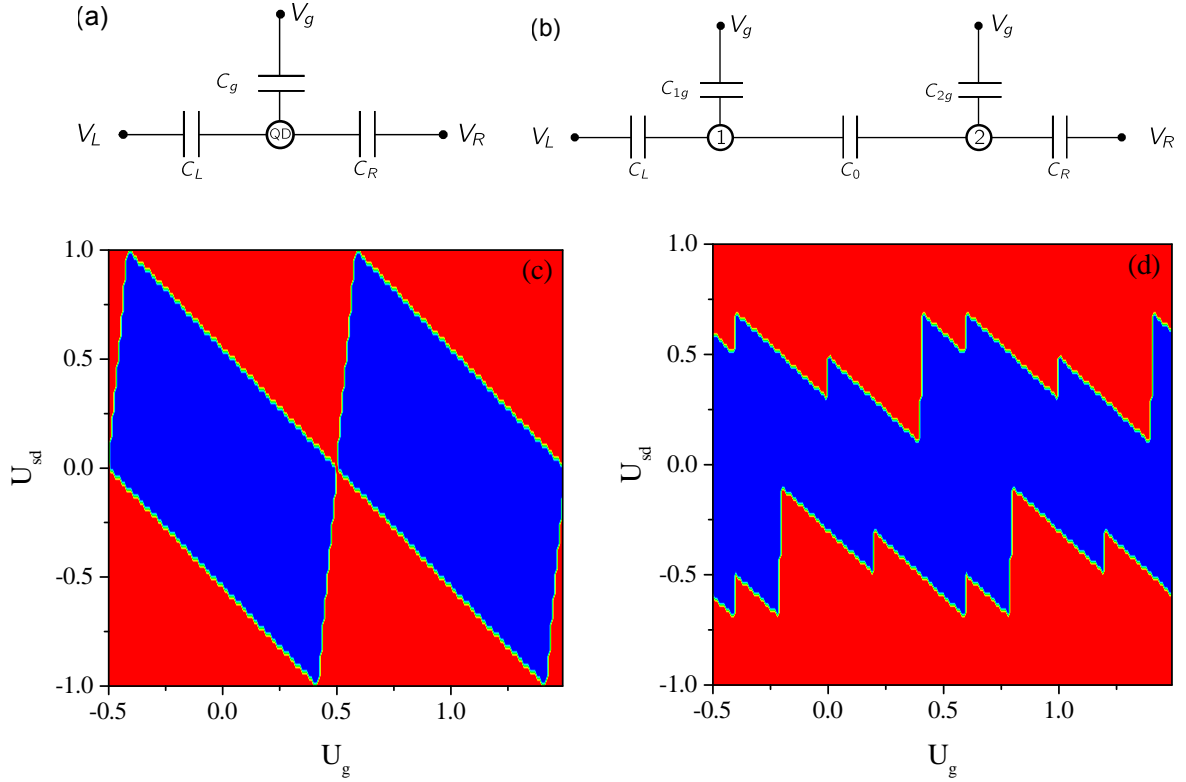


Рис. 3.11: (а) Эквивалентная электростатическая схема для одной квантовой точки; (б) Эквивалентная электростатическая схема для двойной квантовой точки; (с) и (d) Типичные карты кулоновской блокады для одиночных и двойных квантовых точек, соответственно, при $T = 0$. Синяя и красная области соответствуют нулевому и конечному току соответственно.

спинового клапана и ГМС в исследуемой системе. Для системы, состоящей из более чем одной КТ, условия для границ "алмазов" КБ довольно сложны. В общем случае карта КБ для системы с двумя точками [124, 125] (см. эквивалентную схему на рисунке 3.11(б)) показывает конечные транспортные щели вокруг нулевого напряжения сток-исток для всех значений V_g . Другими словами, красные области выше и ниже $V_{sd} = 0$ не касаются друг друга (синие области не отделены друг от друга, в отличие от рисунка 3.11(с)) как показано на рисунке 3.11(д), где показан типична карта КБ для двух КТ.

Основное различие между системами с одной КТ и двойной КТ состоит в том, что в последнем случае, чтобы внести вклад в ток, электрон должен туннелировать на первую КТ, затем на вторую КТ, а затем в контакт. В результате

условия транспорта для двойной КТ должны учитывать разницу в энергиях для добавления электрона в первую и вторую точки и возможность туннелирования электронов между двумя точками. Конечная проводимость в пределе линейного отклика при $V_{sd} \rightarrow 0$ требует равных свободных энергий F_2 для конфигураций с различным количеством частиц в КТ:

$$F_2(N_1, N_2, V_g) = F_2(N_1 + 1, N_2, V_g) = F_2(N_1, N_2 + 1, V_g). \quad (3.33)$$

Известно [124, 125], что в системах с двумя точками может отсутствовать транспортная щель в полностью симметричной системе: любая асимметрия полностью блокирует линейный транспорт при нулевой температуре. В общем случае условия (3.33) не выполняются и, следовательно, открывается транспортная щель для двойной КТ при всех значениях напряжения затвора. Путем изменения напряжений затвора различие между свободными энергиями (3.33) можно минимизировать, которое устанавливает величину транспортных щелей $e \delta V_{sd} = \Delta F_{2 \text{ dots}}$ как функцию V_g , см. рисунок 3.11(d).

Электронный транспорт через УНТ с магнитными молекулами

Для получения карт КБ для УНТ с двумя магнитными молекулами необходимо вычислить свободные энергии конфигураций [116, 124] с различными спиновыми ориентациями молекул (параллельные, $\uparrow\uparrow$ и антипараллельные, $\uparrow\downarrow$), показанные на рисунке 3.8. Представим систему с помощью эквивалентных электрических схем для разных спиновых ориентаций молекул, см. рис. 3.12. Выразим свободную энергию как функцию числа электронов в КТ, $\{N\}_i = \{N_1, N_2, N_3, N_4\}$, напряжения затвора и сток-истока, зарядовую энергию E_C и безразмерную функцию $\phi_{\alpha\beta}$ с $\alpha = \uparrow, \downarrow$, $\beta = \uparrow, \downarrow$, где α и β обозначают спиновые проекции двух молекул:

$$F_{\alpha\beta}(\{N\}_i, V_g, V_{sd}) = E_C \phi_{\alpha\beta} \left(\{N\}_i, \frac{eV_g}{E_C}, \frac{eV_{sd}}{E_C} \right) = E_C \phi_{\alpha\beta}(\{N\}_i, U_g, U_{sd}), \quad (3.34)$$

где U_g, U_{sd} обозначает безразмерные напряжения затвора и сток-истока (измеренные в единицах $E_C = e^2/L$). Кроме того, все емкости нормированы на длину УНТ $C_i \rightarrow C_i/L$. Положения двух молекул x_1, x_2 лежат в диапазоне $(0, 1)$.

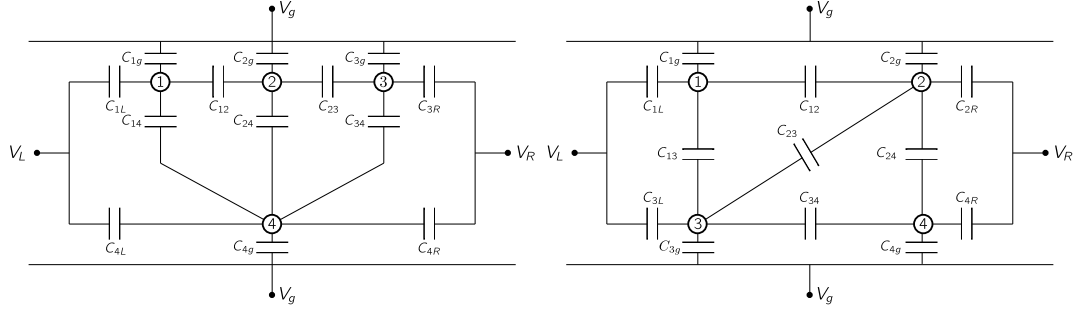


Рис. 3.12: (Левый рисунок) Эквивалентная схема для электронов в случае параллельной ориентации спинов молекул. Каналы 4 и 1-2-3 связаны с различной ориентацией спинов носителей. (Правый рисунок) Аналогично левому, но для антипараллельной ориентации спинов молекул.

Емкости, связанные с затвором, пропорциональны длине КТ, $C_{ig} \sim l_i$, тогда как емкости между КТ и контактами определяются пространственным перекрытием между ними, $C_{iR,L} \sim l_{R,L}$ (в эксперименте, металлические контакты закрывают концы УНТ). Емкости между КТ с разными спинами определяются их пространственным перекрытием. Емкости между КТ в канале с тем же электронным спином записываются как $C_{ij} \simeq \kappa l_i l_j / (l_i + l_j)$. Здесь используется феноменологический параметр κ , характеризующий электростатические свойства молекул, который может быть определен численным моделированием ОММ, присоединенной к УНТ. В дальнейшем мы будем использовать κ в качестве единственного подгоночного параметра модели.

Значение параметра κ можно понять в терминах разницы между системой из одной и двух КТ. Энергия двух точек $F_2(N_1, N_2)$ в пределе $\kappa \rightarrow \infty$ сводится к энергии одиночной КТ $F_1(N_1 + N_2)$ с $C_g = C_{1g} + C_{2g}$. Поэтому подгоночный параметр, связанный с емкостями между молекулой должен быть большим $\kappa \sim 20 \div 30$. Экспериментальные значения транспортных щелей $e \delta V_{sd} \sim 1 \div 2$ мэВ $\ll E_C$ малы по сравнению с зарядовой энергией, тем самым оправдывая предположение, что $\kappa \gg 1$. Рассчитанные щели в транспорте, $\delta(eV_{sd}) = E_C \delta U_{sd} \sim 1 \div 2$ мэВ, находятся в хорошем согласии с экспериментальными наблюдениями. В дальнейшем мы берем для емкостей, связанных с контактами $l_{L,R} = 0.2$, но результаты не сильно

чувствительны к этому параметру.

Свободная энергия для параллельной ориентации спинов молекул (левая часть на рис. 3.12) выражается как

$$\phi_{\uparrow\uparrow}(N_i, U_g, U_{sd}) = \frac{1}{2} \mathbf{Q}'_{\uparrow\uparrow T} \left(\hat{C}_{\uparrow\uparrow}^{-1} \right)^T \mathbf{Q}'_{\uparrow\uparrow}, \quad \mathbf{Q}'_{\uparrow\uparrow} = \begin{pmatrix} N_1 + C_{1g}U_g + C_{1L}U_L \\ N_2 + C_{2g}U_g \\ N_3 + C_{3g}U_g + C_{3R}U_R \\ N_4 + C_{4g}U_g + C_{4L}U_L + C_{4R}U_R \end{pmatrix}, \quad (3.35)$$

где входящая в это выражение матрица емкостей задается как

$$\hat{C}_{\uparrow\uparrow} = \begin{pmatrix} C_{1g}+C_{1L}+C_{14}+C_{12} & -C_{12} & 0 & -C_{14} \\ -C_{12} & C_{2g}+C_{12}+C_{24}+C_{23} & -C_{23} & -C_{24} \\ 0 & -C_{23} & C_{3g}+C_{23}+C_{34}+C_{3R} & -C_{34} \\ -C_{14} & -C_{24} & -C_{34} & C_{4g}+C_{4L}+C_{4R}+C_{14}+C_{24}+C_{34} \end{pmatrix}. \quad (3.36)$$

$$C_{1g} = x_1, \quad C_{2g} = x_2 - x_1, \quad C_{3g} = 1 - x_2, \quad C_{4g} = 1, \quad (3.37)$$

$$C_{14} = x_1, \quad C_{24} = x_2 - x_1, \quad C_{34} = 1 - x_2,$$

$$C_{12} = \kappa \frac{x_1(x_2 - x_1)}{x_2}, \quad C_{23} = \kappa \frac{(x_2 - x_1)(1 - x_2)}{1 - x_1}, \quad C_{1L} = C_{3R} = C_{4L} = C_{4R} = l_{LR}.$$

Предположим, что напряжение сток-исток падает как $V_L = -V_{sd}$, $V_R = 0$, т.е. напряжение подается на левый контакт, аналогично эксперименту.

Для антипараллельной конфигурации спинов молекул (правая часть рис. 3.12) свободная энергия

$$\phi_{\uparrow\downarrow}(N_i, U_g, U_{sd}) = \frac{1}{2} \mathbf{Q}'_{\uparrow\downarrow T} \left(\hat{C}_{\uparrow\downarrow}^{-1} \right)^T \mathbf{Q}'_{\uparrow\downarrow}, \quad \mathbf{Q}'_{\uparrow\downarrow} = \begin{pmatrix} N_1 + C_{1g}U_g + C_{1L}U_L \\ N_2 + C_{2g}U_g + C_{2R}U_R \\ N_3 + C_{3g}U_g + C_{3L}U_L \\ N_4 + C_{4g}U_g + C_{4R}U_R \end{pmatrix}, \quad (3.38)$$

А матрица емкостей:

$$\hat{C}_{\uparrow\downarrow} = \begin{pmatrix} C_{1g}+C_{1L}+C_{12}+C_{13} & -C_{12} & -C_{13} & 0 \\ -C_{12} & C_{2g}+C_{2R}+C_{24}+C_{12}+C_{23} & -C_{23} & -C_{24} \\ -C_{13} & -C_{23} & C_{3g}+C_{3L}+C_{34}+C_{23}+C_{13} & -C_{34} \\ 0 & -C_{24} & -C_{34} & C_{4g}+C_{4R}+C_{24}+C_{34} \end{pmatrix}, \quad (3.39)$$

$$C_{1g} = x_1, \quad C_{2g} = 1 - x_1, \quad C_{3g} = x_2, \quad C_{4g} = 1 - x_2, \quad (3.40)$$

$$C_{13} = x_1, \quad C_{23} = x_2 - x_1, \quad C_{24} = 1 - x_2,$$

$$C_{12} = \kappa x_1(1 - x_1), \quad C_{34} = \kappa x_2(1 - x_2), \quad C_{1L} = C_{3L} = C_{2R} = C_{4R} = l_{LR}.$$

Теперь можно записать ток в терминах открытого числа транспортных каналов, как это обсуждалось в предыдущем разделе. Для параллельной конфигурации спинов молекул уравнения для токов во всех каналах с множеством электронов $\{N\}_i$:

$$J_{L \rightarrow R}^{(4)}(\{N\}_i) = \Theta(\Delta \mathcal{E}_{L \rightarrow 4}) \Theta(\Delta \mathcal{E}_{4 \rightarrow R}), \quad (3.41)$$

$$J_{L \rightarrow R}^{(1-2-3)}(\{N\}_i) = \Theta(\Delta \mathcal{E}_{L \rightarrow 1}) \Theta(\Delta \mathcal{E}_{1 \rightarrow 2}) \Theta(\Delta \mathcal{E}_{2 \rightarrow 3}) \Theta(\Delta \mathcal{E}_{3 \rightarrow R}),$$

где верхний индекс обозначает КТ, задействованную в канале, а $\Delta \mathcal{E}$ - безразмерная разность энергий, определяемая $\Delta E_{j \rightarrow k}$ в единицах E_C . Для электронов, движущихся в противоположном направлении $R \rightarrow L$, токи могут быть получены таким же образом. Уравнение для полного тока:

$$\mathcal{I}_{\uparrow\uparrow}(U_g, U_{sd}) = \sum_i P_{\{N\}}^{0(\uparrow\uparrow)}(i) \left[J_{L \rightarrow R}^{(4)}(\{N\}_i) + J_{L \rightarrow R}^{(1-2-3)}(\{N\}_i) + J_{R \rightarrow L}^{(4)}(\{N\}_i) + J_{R \rightarrow L}^{(1-2-3)}(\{N\}_i) \right]. \quad (3.42)$$

Для антипараллельной конфигурации спинов молекул уравнения для токов для электронов, движущихся слева направо, приводят к $L \rightarrow R$:

$$J_{L \rightarrow R}^{(1-2)}(\{N\}_i) = \Theta(\Delta \mathcal{E}_{L \rightarrow 1}) \Theta(\Delta \mathcal{E}_{1 \rightarrow 2}) \Theta(\Delta \mathcal{E}_{2 \rightarrow R}), \quad (3.43)$$

$$J_{L \rightarrow R}^{(3-4)}(\{N\}_i) = \Theta(\Delta \mathcal{E}_{L \rightarrow 3}) \Theta(\Delta \mathcal{E}_{3 \rightarrow 4}) \Theta(\Delta \mathcal{E}_{4 \rightarrow R}). \quad (3.44)$$

Выражение для полного тока:

$$\mathcal{I}_{\uparrow\downarrow}(U_g, U_{sd}) = \sum_i P_{\{N\}}^{0(\uparrow\downarrow)}(i) \left[J_{L \rightarrow R}^{(1-2)}(\{N\}_i) + J_{L \rightarrow R}^{(3-4)}(\{N\}_i) + J_{R \rightarrow L}^{(1-2)}(\{N\}_i) + J_{R \rightarrow L}^{(3-4)}(\{N\}_i) \right]. \quad (3.45)$$

Два выражения для полного тока (3.42,3.45) используются для вычисления карты КБ для параллельной и антипараллельной ориентации спинов молекул.

На рисунках 3.13 показаны карты кондактанса для антипараллельных и параллельных спинов молекул, расположенных в $x_1 = 0.2$ и $x_2 = 0.6$.

На левом рисунке 3.13 видно, что для антипараллельной ориентации спинов молекул существует щель вокруг $V_{sd} = 0$ для всех значений напряжения затвора

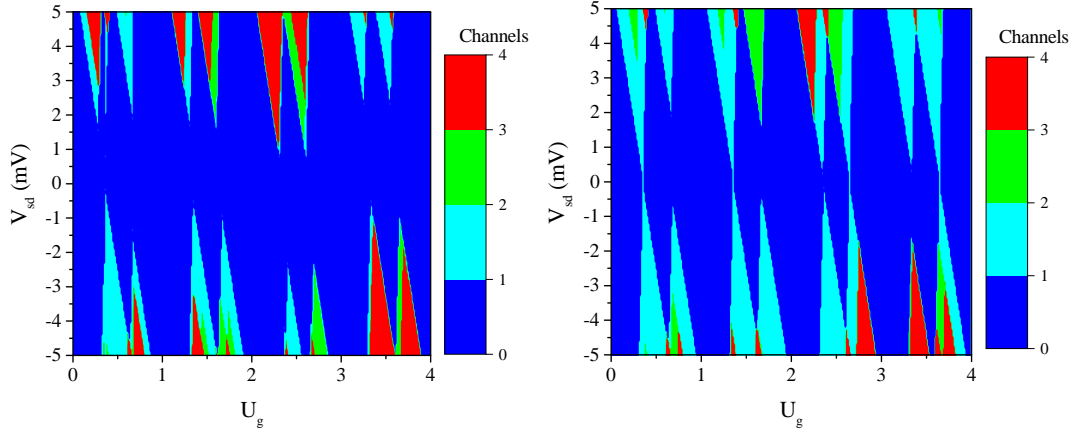


Рис. 3.13: (Левый рисунок) Рассчитанная карта кондактанса $\mathcal{I}_{\downarrow\uparrow}(V_g, V_{sd})$ при нулевом магнитном поле в терминах числа транспортных каналов. Положения молекул: $x_1 = 0.2$, $x_2 = 0.6$; $\kappa = 25$. (Правый рисунок) Аналогично левому рисунку, $\mathcal{I}_{\uparrow\uparrow}(V_g, V_{sd})$ но во внешнем магнитном поле большем критического B_c (см. текст).

V_g . Это аналогично наличию транспортной щели для системы с двумя точками, см. рисунок 3.11(d). Действительно, как обсуждалось выше, для каждой проекции спина электронов УНТ разбивается на две КТ, см. нижнюю панель на рисунке 3.8.

В случае УНТ с магнитными молекулами, имеющими параллельную ориентацию спинов молекул (верхняя панель на рисунке 3.8), транспортные щели закрываются при некоторых значениях V_g , как для КБ с одной КТ, рис. 3.11(c). Таким образом, при таких значениях напряжения затвора возникает значительный эффект спинового клапана. Электростатическое взаимодействие между электронами, туннелирующими через КТ 4 с электронами в КТ 1, 2 и 3 усложняют условия транспорта для КТ 4 в зависимости от заселенности трех других КТ (с электронами с противоположным спином). В результате, в отличие от простейшего случая с одиночной КТ (рисунок 3.11(c)), не все транспортные щели закрываются на карте КБ, как показано в правой части рисунка 3.13.

Происхождение этой особенности связано с изменением числа электронов в (непроводящих) КТ 1, 2 и 3 путем изменения напряжения затвора. При изменении напряжения затвора вблизи точки вырождения (где свободные энергии для $\{N\}_i$ и $\{N\}_i + 1_4$ должны быть равны), числа электронов N_1 , N_2 или N_3 могут меняться

и, следовательно, влиять на свободную энергию таким образом, чтобы условие транспорта для КТ 4 в этом диапазоне V_g больше не выполняется при $V_{sd} \rightarrow 0$. Эта особенность полностью согласуется с существованием слабо выраженного эффекта спинового клапана, наблюдающегося экспериментально при некоторых значениях V_g , см. рисунки 3.3.

3.4.4 Взаимодействие между спинами молекул

В предыдущем разделе было показано, что различные конфигурации ориентаций спинов молекул приводят к различным системам КТ с различными свободными энергиями. Обсудим теперь ориентацию спинов молекул, которые, в свою очередь, определяют ориентацию спина электронов локализованных на лигандах. Введем энергию взаимодействия между спинами электронов локализованных на лигандах, как разность свободной энергии между антипараллельной и параллельной ориентацией спинов:

$$E_{SS}(x_1, x_2, V_g) = F_{\uparrow\downarrow} - F_{\uparrow\uparrow}, \quad (3.46)$$

где x_1 и x_2 - положения двух молекул. Взаимодействие обусловлено отталкивающим кулоновским взаимодействием в присутствии рассеяния на состоянии Фано в области энергий вблизи локализованного состояния молекул.

Энергия взаимодействия (3.46) между локализованными спинами демонстрирует немонотонное поведение при изменении положения молекул, как показано на левом рисунке 3.14 (энергия взаимодействия $E_{SS}(x_1, x_2, V_g)/E_C$ представлена в единицах зарядовой энергии на этом графике). На рис. 3.14 показана зависимость энергии взаимодействия E_{SS} от положения второй молекулы x_2 при фиксированном положении первой молекулы $x_1 = 0.2$ и двух различных значениях напряжений затвора (см. график). Видно, что при $U_g = 1$ взаимодействие между молекулами, через электроны проводимости в УНТ, является антиферромагнитным независимо от положения второй молекулы. Это соответствует экспериментальному наблюдению низкой проводимости в нулевом магнитном поле (напомним, что

для антипараллельной ориентации молекулярных спинов как для электронов со спином вверх так и вниз инеется две КТ, нижняя панель на правом рисунке 3.8).

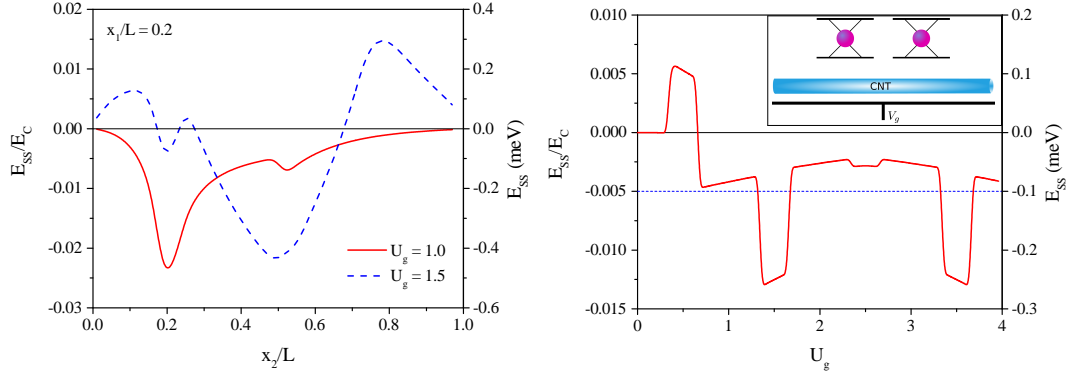


Рис. 3.14: (Левый рисунок) Энергия взаимодействия между спинами локализованных электронов как функция положения молекулы x_2 с фиксированными $x_1 = 0.2$ и $\kappa = 25$ для двух значений напряжения затвора. Отрицательные (положительные) значения соответствуют антиферромагнитному (ферромагнитному) взаимодействию. (Правый рисунок) Энергия взаимодействия (красная кривая) между локализованными спинами как функция напряжения затвора U_g при фиксированном положении молекул, $x_1 = 0.2$ и $x_2 = 0.6$, $\kappa = 25$. Синяя пунктирная линия соответствует энергии взаимодействия, оцененной из эксперимента. Вставка: схема УНТ с двумя TbPc₂.

Типичная энергия взаимодействия порядка $E_{SS} \sim 0.1 \div 0.2$ мэВ. В то же время видно, что при различном значении напряжения затвора, $U_g = 1.5$, эффективное спин-спиновое взаимодействие между молекулами может быть либо антиферромагнитным, либо ферромагнитным, в зависимости от положения второй молекулы. В правой части рисунка 3.14 показана зависимость спин-спинового взаимодействия от напряжения затвора при фиксированном положении молекул, $x_1 = 0.2$ и $x_2 = 0.6$. Почти для всех напряжений затвора взаимодействие имеет антиферромагнитный тип и находится в хорошем согласии с экспериментальным значением ~ 1 К, которое обозначено тонкой синей пунктирной линией на правом рисунке 3.14.

При наличии ненулевого внешнего магнитного поля можно описать УНТ с

ОММ с помощью эффективного спинового гамильтониана:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{eff}} = & -\frac{E_{SS}}{2S^2} \left(\hat{S}_{1z} \hat{S}_{2z} \right) + A \left(\hat{S}_{1z} \hat{J}_{1z} \right) + A \left(\hat{S}_{2z} \hat{J}_{2z} \right) \\ & + \mu_B \left(g_T \hat{\mathbf{J}}_1 + g_T \hat{\mathbf{J}}_2 + g_S \hat{\mathbf{S}}_1 + g_S \hat{\mathbf{S}}_2 \right) \cdot \mathbf{B}, \end{aligned} \quad (3.47)$$

где $g_T = 1.5$ и g_S - g -факторы тербия и локализованных электронов соответственно. Для упрощения модели члены, описывающие зеемановскую энергию электронов, локализованных на Рс, можно опустить из-за их небольшой величины спина по сравнению со спином тербия.

В этом гамильтониане мы предполагаем, что молекулы имеют легкую ось в направлении z . При помощи эффективного гамильтониана (3.47), можно оценить характерное магнитное поле, при котором зеемановская энергия превышает энергию взаимодействия E_{SS} , и спины молекул ориентируются параллельно. В предположении приложенного магнитного поля в направлении z , найдем критическое поле

$$B_c = \frac{E_{SS}}{\mu_B g_T J} \sim 0.2 \div 0.3 \text{ Т}. \quad (3.48)$$

Это значение так же хорошо согласуется с экспериментальными данными, показывающими скачки проводимости, когда магнитное поле изменяется от -1 Т до 1 Т, см. рисунок 3.2.

Следует отметить что предложенный механизм косвенного обмена между локализованными спинами является новым.

3.4.5 Кондактанс и ГМС

Один из самых мощных подходов применяемых для анализа проводимости в режиме КБ, основан на кинетическом уравнении для функции распределения системы КТ [121, 125]. Для сравнения с экспериментом необходимо решение этих уравнений в режиме конечного напряжения сток-исток, где кинетические уравнения не могут быть решены точно, в отличие от линейного режима [121]. В этом режиме можно найти области где будет течь туннельный ток без решения кинетических уравнений путем вычисления функции транспортных каналов $\mathcal{I}(V_g, V_{sd})$, рис. 3.13.

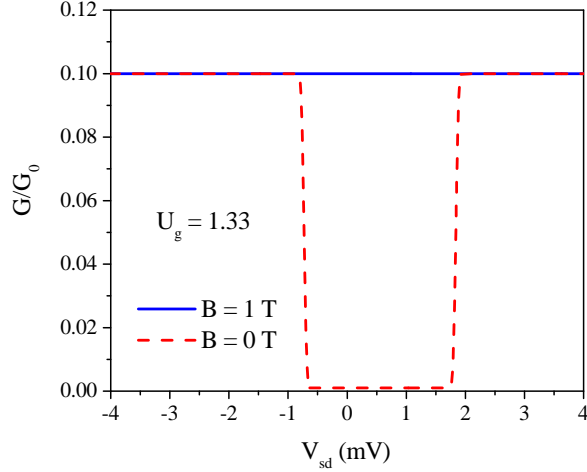


Рис. 3.15: Проводимость при нулевой T в зависимости от напряжения сток-исток при $U_g = 1,33$. Красная пунктирная кривая соответствует отсутствию магнитного поля (антипараллельная ориентация спинов молекул), синяя кривая в конечном магнитном поле выше критического, B_c (параллельные спины молекул). Молекулы расположены в $x_1 = 0.2$, $x_2 = 0.6$ и $\kappa = 25$.

В отсутствии внешнего магнитного поля молекулярные спины ориентированы антипараллельно, а параллельная ориентация спинов реализуется для магнитных полей превышающих критическое, $B > B_c$. Молекулы находятся в точках $x_1 = 0.2$, $x_2 = 0.6$ и возьмем $\kappa = 25$. Для антипараллельной конфигурации проводимость сильно уменьшается в области нулевых напряжений сток-исток из-за кулоновской блокады. Транспортная щель $\delta V_{sd} \sim 1 \div 2$ мэВ, которая открывается при нулевом B , хорошо видна на левом рисунке 3.13, в соответствии с экспериментальным наблюдением, рисунок 3.3.

Как указывалось выше, не все транспортные щели закрыты для параллельной ориентации спинов магнитных молекул. Если напряжение затвора соответствует закрытию щели в магнитном поле выше критического, возникает значительный эффект спинового клапана (т.е., ГМС) как на левом рисунке 3.5. Если щель присутствует в магнитном поле, то она обычно меньше, чем при $B = 0$ (рис. 3.13), что приводит к эффекту слабого спинового клапана, как на правом рис. 3.5 (отличная от нуля линейная проводимость связана с конечной температурой в эксперименте и уширением уровней в УНТ). Таким образом, зависимость эффективности спи-

нового клапана от V_g объясняется развитой теоретической моделью. Кулоновское взаимодействие играет решающую роль: без эффектов КБ никакой транспортной щели не будет когда все спины ОММ ориентированны сильным магнитным полем.

Значение проводимости можно оценить в случае малого числа открытых каналов, $\mathcal{I} \sim 1$, который реализуется при небольшом напряжении сток-исток $eV_{sd} \lesssim 0.3E_C$. Прозрачность молекул \mathcal{T}_M намного больше прозрачности барьеров $\mathcal{T}_{L,R}$ (для энергий, не слишком близких к резонансной энергии, см. рис. 3.7), что дает

$$\frac{G}{G_0} \sim \frac{\mathcal{T}_L \mathcal{T}_R}{\mathcal{T}_L + \mathcal{T}_R}. \quad (3.49)$$

На рисунке 3.15 показана проводимость как функция напряжения сток-исток для $U_g = 1.33$. Красная пунктирная кривая показывает проводимость при $B = 0$ (антипараллельные спины молекул), а синяя кривая соответствует магнитному полю превышающему критическое B_c (параллельные спины молекул). Эффект ГМС, вызванный антиферромагнитным упорядочением спинов молекул и обусловленный открытием транспортной щели при нулевом магнитном поле, хорошо видно на рисунке 3.15 (см. рисунок 3.13). Сдвиг окна с низкой проводимостью по отношению к $V_{sd} = 0$, следующему из предлагаемой модели, снова согласуется с экспериментальными наблюдениями, рисунок 3.5.

3.5 Краткие итоги

- Представлена теоретическая модель, объясняющая эффект гигантского магнитосопротивления (эффект спинового клапана) и кулоновской блокады в углеродных нанотрубках с присоединенными магнитными молекулами. Предлагаемая модель качественно объясняет гигантское магнитосопротивление, а также структуру кулоновских алмазов в нелинейном транспорте в углеродной нанотрубке с присоединенными к ней магнитными молекулами. Развитая теория гигантского магнитосопротивления в углеродных нанотрубках с одиночными магнитными молекулами предсказывает дальнодействующее взаимодействие между ними, обусловленное кулоновским взаимодействием электронов в нанотрубке и их резонансным спин-зависимым рассеянием на молекулах.
- Продемонстрировано, что спин-спиновое взаимодействие (включая его знак) магнитных молекул, присоединенных к углеродной нанотрубке, зависит от напряжения на затворе и положений молекул. Для антиферромагнитного упорядочения спинов магнитных молекул величина магнитосопротивления также зависит от значения напряжения затвора, что приводит к возникновению затворно управляемого эффекта спинового клапана.

Глава 4

Тонкая структура акцептора марганца в арсениде галлия

4.1 Введение

Намагниченностью тонкого слоя ферромагнитного $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ можно манипулировать пикосекундным акустическими импульсами [28, 126] или одноостной статической деформацией [127]. В этих исследованиях было показано, что магнитная анизотропия пленок $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ изменяется под действием деформации [128, 129], и приводит к ориентированию намагниченности в плоскости образца и вне ее. Эти наблюдения подчеркнули, что магнитная анизотропия в том числе обусловлена механическим напряжением, возникающем в эпитаксиальном слое. Открытым остается вопрос о связи магнитной анизотропии пленок $(\text{Ga},\text{Mn})\text{As}$ со свойствами отдельных магнитных акцепторов Mn.

Примесь Mn в GaAs исследовалась различными спектроскопическими методами [130, 131, 132, 133, 38]. Соответствующие результаты показали, что дырка из валентной зоны с полным моментом импульса $J = 3/2$ локализуется на ионе Mn обладающем спином $S = 5/2$ возникающем из конфигурации $3d^5$ его внутренней оболочки. Магнито-фотолюминесценция и электронный парамагнитный резонанс (ЭПР) [131] продемонстрировали антиферромагнитную связь между дыркой и спином марганца. Антиферромагнитный обмен приводит к образованию четырех уровней, которые описываются квантовым числом $F = J + S = 1, 2, 3, 4$ -

полным угловым моментом. Эффективный g фактор основного состояния $F = 1$ был измерен с помощью [131] ЭПР $g = 2.77$ и КРПС [38] $g = 2.74$, соответственно. Эти значения g фактора также хорошо согласуются с моделью акцептора Mn, разработанной в [132]. Основное состояние расщеплено на два мультиплета из-за случайных локальных напряжений, и это расщепление меньше, чем обменная энергия акцептора Mn, которая составляет порядка 4 – 6 мэВ, и оценивается по разным косвенным исследованиям [132, 133]. Прямым измерением энергии расщепления между состояниями $F = 1$ и $F = 2$, по средствам КРПС, была улучшена оценка константы обмена $\Delta_{F_1-F_2} = 2.2$ мэВ [38, 39]. Поскольку КРПС успешно используется для изучения обменных взаимодействий и оценки констант обмена в РМП на основе II-VI и III-V соединений [38, 39, 35, 36, 37, 134] то можно считать, что эта методика будет эффективна для изучения тонкой структуры акцептора Mn.

В данной главе развивается теория тонкой структуры уровней одиночного акцептора марганца A_{Mn}^0 в объемном GaAs при наличии одноосной деформации и внешнего магнитного поля. Производится сравнение с экспериментальными данными по спектрам комбинационного рассеяния с переворотом спина на акцепторе Mn. Анализ позволил определить величину случайных локальных полей деформации действующих на акцептор, уточнить величину константы обменного взаимодействия, а так же оценить ее зависимость от внешнего приложенного поля деформации.

4.2 Экспериментальные результаты

В эксперименте, выполненным в ФТИ им. А.Ф. Иоффе В.Ф. Сапегой и Г.С. Дмитриевым, использовался объемный образец GaAs:Mn с концентрацией марганца $6 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Температура образца в эксперименте составляла $= 4$ К. Геометрия эксперимента показана на нижней вставке рис. 4.1. Одноосная деформация до $= 5$ кбар прикладывалась вдоль направления [111], а падающей и отраженный луч света распространялся по оси [1-10] сонаправленной с внешним магнитным

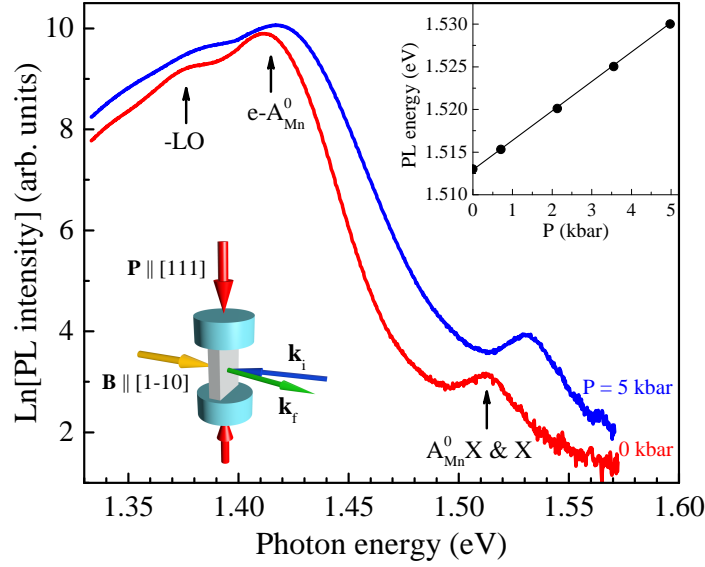


Рис. 4.1: Спектры фотолюминисценции для образца без (красная кривая) и при приложении одноосной деформации (синяя кривая). Нижняя вставка: схема эксперимента, образец - серый кубик. Векторы падающего и рассеянного света обозначаются соответственно \mathbf{k}_i и \mathbf{k}_f . Верхняя вставка: зависимость энергетического положения линии фотолюминисценции X и $A_{Mn}^0 X$ от приложенного напряжения.

полем.

Для описания свойств циркулярной поляризации линий КРПС, используются обозначения $x(\sigma^\eta, \sigma^\lambda)\bar{x}$, где \bar{x} и x перпендикулярны к плоскости образца и $\eta = \pm$, $\lambda = \pm$ обозначают круговую поляризацию возбуждающего σ^η и рассеянного σ^λ света, соответственно. Знак η и λ определяется знаком проекции спина фотона на направление распространения возбуждающего света. Так же использовались линейные поляризации света $x(\pi, \sigma)\bar{x}$, или $x(\pi, \pi)\bar{x}$. В этом случае вектор электрического поля света параллелен, для π , или перпендикулярен, для σ , к оси [111]. Зависимость спектров КРПС от деформации исследовалась при накачке линейно поляризованным светом, а от магнитного поля – циркулярно поляризованным.

Полоса фотолюминисценции (ФЛ), обозначенная как $e - A_{Mn}^0$, с центром на 1.411 эВ, возникает из-за излучательной рекомбинации свободных фотовозбужденных электронов (e) с дырками, связанными на нейтральных акцепторах Mn. Полоса около 1.514 эВ приписывается [38] перекрывающимся зонам свободного

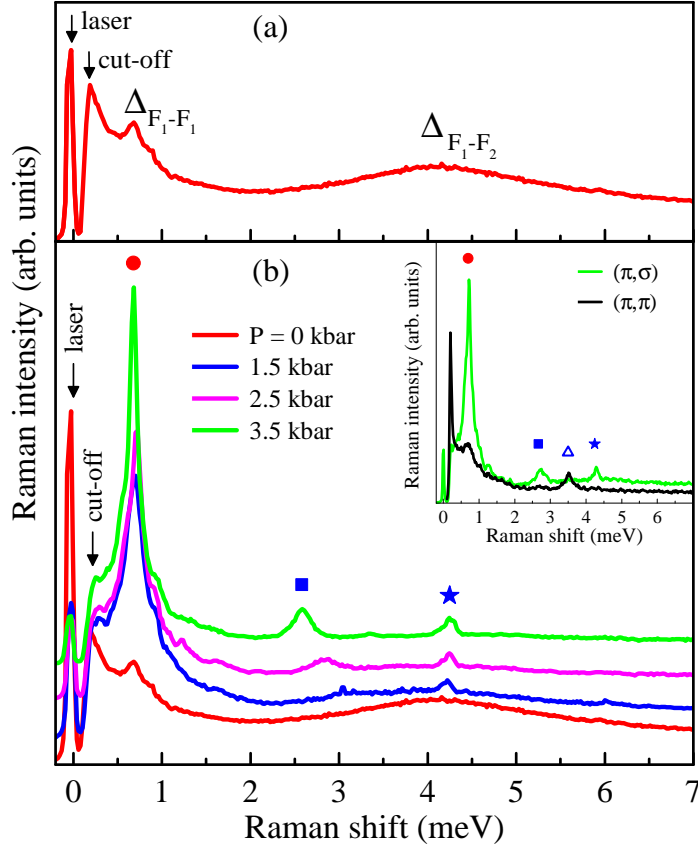


Рис. 4.2: (а) Спектр комбинационного рассеяния акцептора Mn, полученный в конфигурации $x(\pi, \sigma)\bar{x}$ при нулевом магнитном поле и в отсутствие одноосной деформации; $T = 4$ К. Лазерная линия и отсечка монохроматора отмечены стрелками. (б) Спектр комбинационного рассеяния акцептора Mn в геометрии $x(\pi, \sigma)\bar{x}$ для различных значений деформации, приложенной вдоль оси $[111]$; $T = 4$ К, $B = 0$ Т. Вставка: спектры комбинационного рассеяния для геометрии $x(\pi, \sigma)\bar{x}$ (зеленая кривая) и $x(\pi, \pi)\bar{x}$ (черная кривая); $T = 4$ К, $P = 3.5$ кбар.

экситона X и экситона, связанного на акцепторе марганца $A_{Mn}^0 X$. Внешняя одноосная деформация приводит к синему смещению обеих полос. Зависимость энергетического положения экситонной полосы от приложенной деформации показана на рис. 4.1, положение полосы смещается при увеличении приложенной одноосной деформации от $P = 0$ до 5 кбар примерно на +15 мэВ.

Спектр КРПС, полученный при резонансном возбуждении экситонов связанных на акцепторах марганца ($E_{exc} = 1.514$ эВ), показан на рис. 4.2(а). Он содержит интенсивную линию, сдвинутую на $\Delta_{F_1-F_1} = 0.7$ мэВ от линии лазера, а также ши-

рокую линию на $\Delta_{F_1-F_2} = 4.4$ мэВ. Широкая линия на 4.4 мэВ приписывается переходам между состояниями $F = 1$ и $F = 2$ комплекса A_{Mn}^0 , в то время как линия $\Delta_{F_1-F_1}$ обусловлена, скорее всего, переходом между состояниями с $m_F = 0$ и $|m_F| = 1$ основного состояния акцептора с $F = 1$, которое расщеплено вследствие наличия локального электрического поля или деформации [38].

Для проверки этого было исследовано влияние одноосной деформации на положения линий КРПС. На рис. 4.2(b) представлены спектры КРПС измеренные при различных значениях деформации. Для каждой приложенной деформации, спектр КРПС измерялся при резонансном возбуждении полосы $A_{Mn}^0 X$. Линия КРПС $\Delta_{F_1-F_1}$ становится более узкой и гораздо более интенсивной с ростом величины деформации. Кроме того, свойства её линейной поляризации изменяются: в то время как она слабо поляризована при $\sigma = 0$, она становится сильно поляризованной в деформированном образце.

Широкая линия КРПС $\Delta_{F_1-F_2}$ расщепляется на три узкие линии при приложении одноосной деформации, рис. 4.2(b). Две из этих линий (обозначены квадратом и звездочкой) наблюдаются в скрещенной $x(\pi, \sigma)\bar{x}$ поляризации, а третья (обозначена треугольником) проявляется в параллельной $x(\pi, \pi)\bar{x}$ конфигурации. Зависимость сдвига линий от приложенной деформации приведена на рис. 4.3.

Линии обозначенные квадратами и треугольниками демонстрируют уменьшение их энергий со схожим наклоном при увеличении деформации, в то время как линия маркируемая звездочками не чувствительна к степени деформации внутри образца. Одноосная деформация расщепляет состояния $F = 1$ и $F = 2$ акцептора Mn на два ($m_F = 0, \pm 1$) и три ($m_F = 0, \pm 1, \pm 2$) - мультиплета соответственно. Здесь, каждый мультиплет характеризуется величиной проекции углового момента m_F на направление деформации.

Внешнее магнитное поле снимает оставшиеся вырождения с показанных линий КРПС и позволяет исследовать энергетическую структуру акцептора. На рис. 4.4(a) показан циркулярно поляризованный спектр КРПС, измеренный при

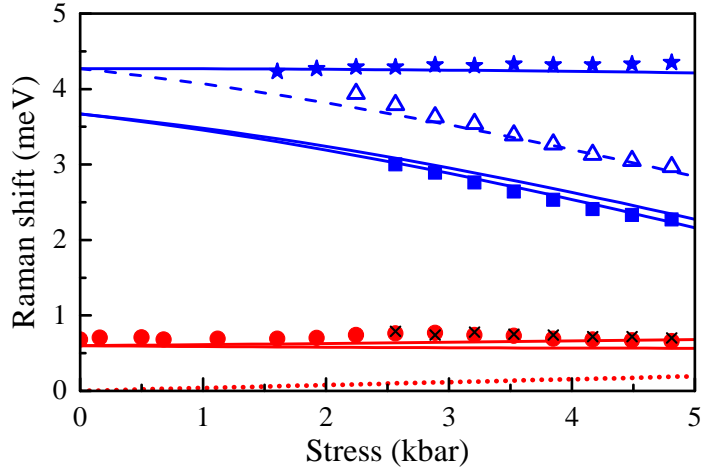


Рис. 4.3: Сдвиги линий комбинационного рассеяния, измеренные в конфигурациях поляризации $x(\pi, \sigma)\bar{x}$ (закрытые символы) и $x(\pi, \pi)\bar{x}$ (открытые треугольники), как функция одноосного напряжения вдоль оси [111]; $T = 4$ К, $B = 0$ Т. Экспериментальная ошибка не превышает размер символа. Кривые представляют собой теоретический расчет, см. подробности в тексте.

$B = 5$ Т, для образца, подвергнутого деформации $P = 4.8$ кбар. В спектре КРПС наблюдаются несколько хорошо разрешенных линий, которые можно отнести к переходам между состояниями ионизованного акцептора Mn^{2+} и процессам рассеяния с переворотом спина на акцепторе Mn. Энергетические сдвиги двух линий, отмеченных черными символами, изменяется линейно с приложенным полем и стремятся при $B = 0$ Т к нулю, как это показано на рис. 4.4(b). Их зависимости от магнитного поля могут быть описаны как $E_{\blacklozenge} = g_d \mu_B B$ и $E_{\blacklozenge} = 2g_d \mu_B B$, где μ_B магнетон Бора и $g_d = 2.02 \pm 0.02$. Так как величина g-фактора и поляризационные характеристики хорошо совпадают со своими значениями для ионизованных [131, 38] акцепторов Mn, полагается, что эти низкоэнергетические линии КРПС происходят из переворотов спинов электронов во внутренней оболочке ионизованных акцепторов Mn^{+2} . Эти линии связаны с переходами электронов внутри $3d^5$ оболочки отрицательно заряженного иона Mn^{+2} при взаимодействии с фотовозбужденными экситонами.

Линии КРПС на 1.38 мэВ и 2.01 мэВ, отмеченные кружками на рис. 4.4, в больших полях меняются линейно с увеличением поля B , а их энергетический сдвиг хо-

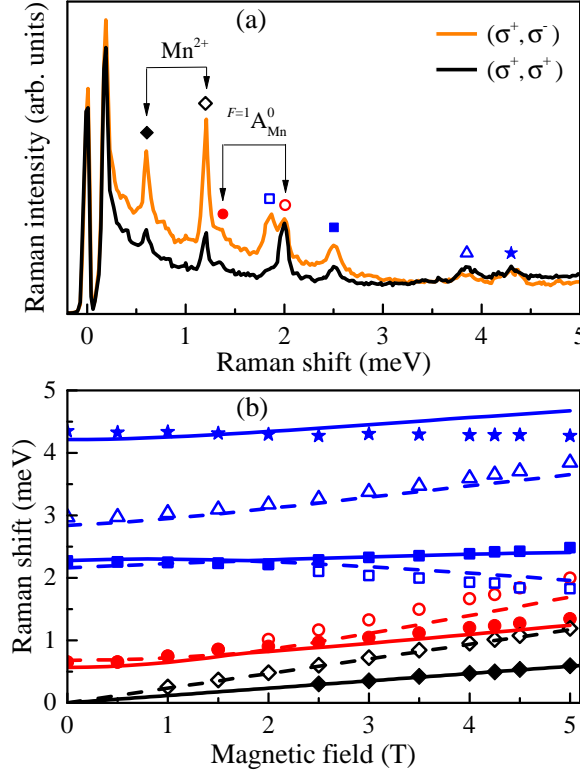


Рис. 4.4: (а) Спектры комбинационного рассеяния, измеренные при $B = 5$ Т в конфигурации $x(\sigma^+, \sigma^-)\bar{x}$, оранжевая кривая и $x(\sigma^+, \sigma^+)\bar{x}$, черная кривая; $T = 4$ К, $P = 4.8$ кбар. Стрелки обозначают линии комбинационного рассеяния, соответствующие переходам между $F = 1$ состояниями акцептора Mn и ионизованной примесью Mn^{2+} . (б) Зависимость сдвига линий КРПС от магнитного поля для конфигурации $x(\sigma^+, \sigma^-)\bar{x}$, $T = 4$ К и $P = 4.8$ кбар. Кривые - теоретический расчет.

рошо описывается выражениями: $E_{\bullet} = g_{F_1}\mu_B B$ и $E_{\circ} = 2g_{F_1}\mu_B B$ с $g_{F_1} = 2.74 \pm 0.03$. При уменьшении магнитного поля их энергетические сдвиги приближаются к одному и тому же ненулевому значению $\Delta_{F_1-F_1}$. Эти две линии являются результатом переходов между подуровнями основного состояния Mn-акцептора A_{Mn}^0 , расщепленного в магнитном поле[131, 38].

Зависимости энергетических сдвигов оставшихся линий КРПС связаны с переходами между различными зеемановскими подуровнями состояний $F = 1$ и $F = 2$ и требуют теоретического рассмотрения.

4.3 Теоретическая модель

Исследуемые процессы КРПС могут быть описаны с помощью матрицы рассеяния. Дифференциальная интенсивность рассеянного света в единицу телесного угла выражается через матрицу рассеяния как $dI/d\omega d\Omega \sim |\langle f_{\text{ph}} f_{\text{Mn}} | \hat{S} | i_{\text{Mn}} i_{\text{ph}} \rangle|^2$, где \hat{S} - матрица рассеяния, I - интенсивность рассеянного света, а $|i\rangle, |f\rangle$ - начальные и конечные состояния фотонов (ph) и акцептора Mn, соответственно. Первый ненулевой вклад в интенсивность рассеяния определяется третьим порядком теории возмущения, а именно, вторым порядком по электрон-фотонному взаимодействию \hat{V}_{ph} и первым порядком по обменному взаимодействию $\hat{V}_{\text{ex}} = A(\hat{\mathbf{S}}\hat{\mathbf{J}})$ между дыркой и $3d^5$ электронами иона марганца. Здесь A - константа обменного взаимодействия, $\hat{\mathbf{S}}$ и $\hat{\mathbf{J}}$ - операторы спина Mn и дырки, соответственно. Дифференциальная интенсивность рассеянного света может быть представлена в виде

$$\frac{dI}{d\omega d\Omega} \sim |\langle f_{\text{Mn}} | \left(2\hat{S}_z a_z + \hat{S}_- a_+ + \hat{S}_+ a_- \right) | i_{\text{Mn}} \rangle|^2, \quad (4.1)$$

$$\mathbf{a} \sim \langle f_{\text{ph}} | (\hat{\mathbf{e}}\hat{\mathbf{p}})\hat{\mathbf{J}}(\hat{\mathbf{e}}\hat{\mathbf{p}}) | i_{\text{ph}} \rangle, \quad (4.2)$$

где $\hat{\mathbf{e}}$ - оператор электрического поля и $\hat{\mathbf{p}}$ оператор импульса электрона. Вектор \mathbf{a} определяет поляризационные свойства рассеянного света. Для $x(\pi, \sigma)\bar{x}$ конфигурации $a_z = 0$ и $a_{\pm} \sim 1$, в то время как для параллельной линейно поляризованной конфигурации $x(\pi, \pi)\bar{x}$, $\mathbf{a} = 0$. Тем не менее, в четвертом порядке теории возмущений для конфигурации $x(\pi, \pi)\bar{x}$ процесс с двойным переворотом спина разрешен, что связано с ненулевыми компонентами $(\hat{S}_+ \hat{J}_-)(\hat{S}_- \hat{J}_+)$ или $(\hat{S}_+ \hat{J}_-)(\hat{S}_+ \hat{J}_-)$ матрицы рассеяния. В точной геометрии Фарадея, для конфигурации поляризации $x(\sigma^+, \sigma^-)\bar{x}$, $\mathbf{a} = 0$ равен нулю в третьем порядке теории возмущения, и только в четвертом порядке процесс с двойным переворотом спина, становится разрешенным. Однако, отклонение падающего луча на 10-15 градусов от нормали плоскости образца активирует процесс КРПС в скрещенной поляризации $x(\sigma^+, \sigma^-)\bar{x}$, а так же в конфигурациях $x(\pi, \sigma)\bar{x}$ и $x(\pi, \pi)\bar{x}$.

Для расчета сигнала КРПС необходимо использовать оператор спина Mn в

представлении взаимодействия $\hat{\mathbf{S}}(t) = e^{i\hat{H}_0 t} \hat{\mathbf{S}} e^{-i\hat{H}_0 t}$, где \hat{H}_0 гамильтониан акцептора Mn, который будет приведен ниже. Матричный элемент $\langle f_{\text{Mn}} | \hat{\mathbf{S}}(t) | i_{\text{Mn}} \rangle$ можно записать в виде $e^{i\Delta t} \langle f_{\text{Mn}} | \hat{\mathbf{S}} | i_{\text{Mn}} \rangle$, где $\Delta = \omega_{f_{\text{Mn}}} - \omega_{i_{\text{Mn}}}$ - разница между собственными значениями гамильтониана \hat{H}_0 , которая определяет сдвиг линии неупругого рассеяния. Гамильтониан, который описывает комплекс A_{Mn}^0 , состоящий из Mn^{2+} и локализованной дырки (h), имеет следующий вид:

$$\begin{aligned} \hat{H}_0 = & \hat{H}_{\text{loc}} + A \left(\hat{\mathbf{S}}\hat{\mathbf{J}} \right) + \mu_{\text{B}} g_{\text{d}} \left(\hat{\mathbf{S}}\mathbf{B} \right) - \mu_{\text{B}} g_{\text{h}} \left(\hat{\mathbf{J}}\mathbf{B} \right) \\ & - b \sum_i \epsilon_{ii} \hat{J}_i^2 - d \sum_{ij} \epsilon_{ij} \{ \hat{J}_i \hat{J}_j \} + \delta \sum_{ij} n_i n_j \{ \hat{J}_i \hat{J}_j \}. \end{aligned} \quad (4.3)$$

\hat{H}_{loc} - часть гамильтониана описывающая локализацию дырки на ионе марганца, ϵ_{ij} тензор деформации, b, d - константы деформационного потенциала акцептора Mn, δ определяет силу случайного поля, n_i - направляющие косинусы случайного поля, а $\{ \hat{J}_i \hat{J}_j \} = (\hat{J}_i \hat{J}_j + \hat{J}_j \hat{J}_i)/2$, где i, j равны x, y и z . Случайные поля, действующие на комплекс Mn-дырка в каждой точке пространства могут быть представлены в виде $\delta \hat{J}_z^2$ со случайным направлением z' . Эти поля[4] могут быть вызваны наличием локальных деформаций и/или заряженными центрами Mn^{2+} .

Напрямую измеренная константа обменного взаимодействия A , определяемая[38] из расщепления мультиплетов с полными моментами $F = 1$ и $F = 2$ по линии $\Delta_{F_1-F_2}$, составляет около 2.2 мэВ и превышает энергию деформации bP/C_{ii} , dP/C_{ii} , а также зеемановские энергии, где C_{ii} - упругие постоянные GaAs. Можно найти гамильтонианы, для основного ($F = 1$) и первого возбужденного ($F = 2$) состояния:

$$\begin{aligned} \hat{H}_{F=1} = & \mu_{\text{B}} \left(\frac{7}{4} g_{\text{d}} + \frac{3}{4} g_{\text{h}} \right) \left(\hat{\mathbf{F}}\mathbf{B} \right) - \frac{21}{20} [b\text{Sp}(\hat{\epsilon}) + \delta] \hat{I} \\ & - \frac{3}{10} b \sum_i \hat{F}_i^2 \epsilon_{ii} - \frac{3}{10} d \sum_{ij} \{ \hat{F}_i \hat{F}_j \} \epsilon_{ij} + \frac{3}{10} \delta \sum_{ij} \{ \hat{F}_i \hat{F}_j \} n_i n_j, \end{aligned} \quad (4.4)$$

$$\begin{aligned} \hat{H}_{F=2} = & \mu_{\text{B}} \left(\frac{11}{12} g_{\text{d}} - \frac{1}{12} g_{\text{h}} \right) \left(\hat{\mathbf{F}}\mathbf{B} \right) + \left[2A - \frac{55}{28} b\text{Sp}(\hat{\epsilon}) - \frac{55}{28} \delta \right] \hat{I} + 2A_P \text{Sp}(\hat{\epsilon}) \hat{I} + \\ & \frac{5}{14} b \sum_i \hat{F}_i^2 \epsilon_{ii} + \frac{5}{14} d \sum_{ij} \{ \hat{F}_i \hat{F}_j \} \epsilon_{ij} - \frac{5}{14} \delta \sum_{ij} \{ \hat{F}_i \hat{F}_j \} n_i n_j. \end{aligned} \quad (4.5)$$

Оба гамильтониана содержат единичную матрицу \hat{I} и оператор углового момента $\hat{\mathbf{F}}$ с соответствующей размерностью. В (4.5) так же добавлена зависящая от деформации добавка к константе обменной энергии A_p , которая будет определена из сравнения с экспериментом. Используя гамильтонианы (4.4) и (4.5) можно найти уровни энергии основного и первого возбужденного состояния акцептора Mn во внешних полях. Стоит отметить, что учет случайных локальных полей, действующих на акцептор Mn, требует, для расчета переходов КРПС, усреднение по всем возможным ориентациям z' случайных полей.

4.4 Обсуждение результатов

В этом разделе сравним данные измерений КРПС с вышеописанной теоретической моделью тонкой структуры акцептора Mn в присутствии случайного локального поля, внешних одноосной деформации и магнитного поля. Для расчетов используются следующие параметры: $g_d = 2.02$ [133, 47, 38], $g_h = -1$ [47, 134], $d = 3.1$ эВ [133], $\delta = 2$ мэВ [132], а упругие постоянные $C_{11} = 1.22$ Мбар, $C_{12} = 0.55$ Мбар и $C_{44} = 0.62$ Мбар. Из теоретического моделирования экспериментальных данных определяется постоянная p-d обмена $= 2.6$ мэВ и зависящая от деформации поправка к константе обменного взаимодействия $A_p = 0.2$ эВ.

Рассчитанные энергии основного и первого возбужденного состояний акцептора Mn как функции одноосной деформации показаны на рис. 4.5(а). Здесь, считается, что при отсутствии внешней деформации ($P = 0$) акцептор Mn испытывает воздействие только от случайной локальной деформации, для примера направленной вдоль оси [001]. Эта случайная деформация приводит к расщеплению основного и первого возбужденного состояний в $F_1^0, F_1^{\pm 1}$ и $F_2^0, F_2^{\pm 1}, F_2^{\pm 2}$ мультиплеты, соответственно.

Нижний индекс означает полный угловой момент, а верхний индекс его проекции m_F на ось [001], являющиеся хорошим квантовым числом в отсутствие внешних полей. Обратим внимание, что вырождение самого низкого по энергии

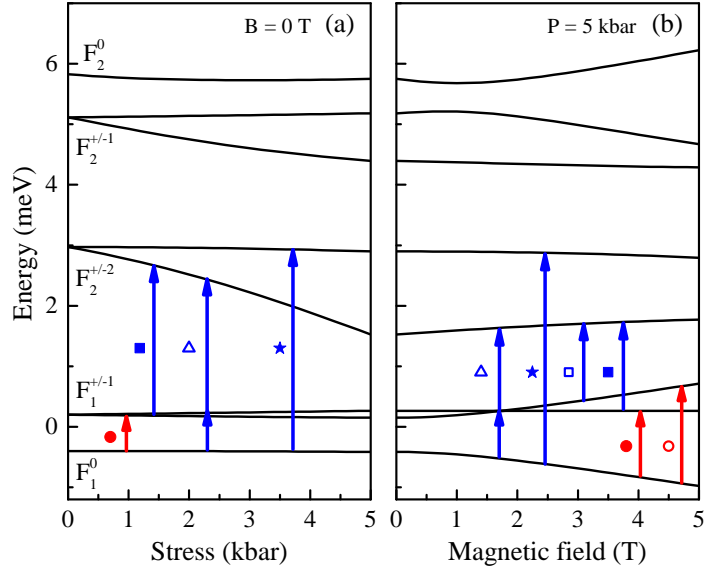


Рис. 4.5: Рассчитанные энергии уровней мультиплетов $F = 1$ и $F = 2$ со случайной деформацией $\delta = 2$ мэВ, ориентированной вдоль оси $[001]$. Зависимость энергий уровня Mn-акцептора от (а) одноосного напряжения, параллельного оси $[111]$, и от (б) магнитного поля вдоль оси $[1-10]$. Вертикальные стрелки, обозначенные символами, соответствуют экспериментально наблюдаемым переходам КРПС между мультиплетами Mn-акцептора с $F = 1$ и $F = 2$, см. текст.

мультиплета определяется знаком случайной деформации δ . Одноосная деформация, приложенная вдоль направления $[111]$ приводит к дальнейшему расщеплению мультиплетов $F = 1$ и $F = 2$. На рис. 4.5(б) показано поведение мультиплетов акцептора Mn в зависимости от магнитного поля, при приложенной внешней одноосной деформации $P = 5$ кбар.

Стрелки обозначенные кружками на рис. 4.5 показывают переходы между мультиплетами, характеризующимися полным угловым моментом $F = 1$. Эти переходы соответствуют линиям КРПС отмеченным кружками на рис. 4.4,4.3. На этих рисунках рассчитанные зависимости энергий переходов КРПС от приложенной деформации и магнитного поля изображены кривыми. Видно, что одноосная деформация, приложенная вдоль направления $[111]$ заметно не меняет начального расщепления $F = 1$, вызванного случайной деформацией (на этих рисунках произведено усреднение по случайным ориентациям z'). Это предсказание хорошо согласуется с экспериментальным наблюдением. В модели, в которой предпола-

гаются отсутствие флуктуирующей случайной деформации, расщепление состояния $F = 1$ из-за внешней одноосной деформации показывает слабую линейную зависимость, как это показано пунктирной линией на рис. 4.3. При приложении магнитного поля основное состояние расщепляется на три зеемановских подуровня. Рассчитанный g -фактор этих состояний с $F = 1$ составляет $g = 2.75$, что совпадает с измеренной величиной $g = 2.74$. Следует отметить, что хорошо разделенные линии КРПС появляются, когда энергия расщепления в магнитном поле сравнима с величиной случайного расщепления. Значение расщепления состояния $F = 1$, вызванное случайной деформацией δ непосредственно соответствует энергетическому сдвигу (0.6-0.7 мэВ) линии КРПС $\Delta_{F_1-F_1}$ при нулевой одноосной деформации.

Обсудим теперь линии КРПС, связанные с переходами между состояниями мультиплетов с $F = 1$ и $F = 2$, показанные синими стрелками на рис. 4.5. Переходы в состояния $F = 2$ могут происходить с двух низших мультиплетов F_1^0 и $F_1^{\pm 1}$, при температурах $(E_{\pm 1}^{F=1} - E_0^{F=1})/(k_B T) \approx 1$, что выполнено в эксперименте. Поляризационные свойства линий позволяют отнести их к конкретным межуровневым переходам: в соответствии с правилами отбора для процессов КРПС, обсуждаемых в рамках уравнений (4.1) и (4.2).

Переходы, в которых спин марганца и дырки изменяется на $|1|$, присутствуют в спектрах КРПС в конфигурациях $x(\pi, \sigma)\bar{x}$ со скрещенной поляризацией. Они соответствуют линиям обозначенными квадратом и звездочкой. Следует отметить, то в виду различной ориентации одноосной деформации и случайных полей, переходы с низнего подуровня состояния с полным моментом $F = 1$ в состояния нижних подуровней мультиплета $F = 2$ разрешены.

При измерении КРПС в одинаковой поляризации падающего и рассеяного света $x(\pi, \pi)\bar{x}$, как отмечалось ранее, возможно детектировать процессы с двойным переворотом спина. В линию отмеченную треугольником на рис. 4.5 вносят вклад переходы (i) между состояниями с полным моментом равным единице $F = 1$ и,

затем, (ii) переход в состояние $F = 2$. Этот процесс с двойным переворотом спина схематически показан последовательностью из двух стрелок. В соответствии с этой схемой, разность энергий между переходами, показанными квадратами и треугольниками должна точно совпадать с энергией перехода между состояниями с $F = 1$ - линия показанная кружком. Это хорошо согласуется с экспериментом, вычитание экспериментальных значений показано черными крестиками на рис. 4.3 и совпадает с кружками.

Обсудим влияние одноосной деформации на постоянную p-d обмена A . В недеформированном материале разница энергий состояний с $F = 1$ и $F = 2$ равна удвоенной константе обменного взаимодействия. Одноосная деформация, приложенная вдоль направления $[111]$ не меняет разность энергий этих состояний, в то время как экспериментальные данные показывают уменьшение их разницы энергий. Это уменьшение не может быть объяснено ни деформационным потенциалом акцептора Mn, ни, например, в два раза большим значением d , которое в работе [135] равно 5-6 эВ. Предполагается, что уменьшение разницы энергий мультиплетов $F = 1$ и $F = 2$ обусловлено зависимостью от деформации константы обменного взаимодействия между электронами внутренней d -оболочки иона Mn и локализованной дырки. Для того, чтобы учесть зависимость постоянной обменного взаимодействия A от деформации нужно вычислить зависящий от деформации интеграл перекрытия волновых функций электронов d оболочки и дырки [136, 137]. Ниже будет использован феноменологический подход, в рамках которого A будет разложена по степеням приложенной деформации P и ограничена линейными по P поправками:

$$A(\hat{\epsilon}) = A + A_P \text{Sp}(\hat{\epsilon}).$$

Это приводит к выражениям (4.4) и (4.5). Из сравнения теории и эксперимента (где участвуют возбужденные состояния с $F = 2$) оказывается что значение $A_P = 0.2$ эВ. Это означает, что постоянная p-d обмена уменьшается примерно на $\Delta A(P)/A(0) \approx 20\%$ для одноосной сжимающей деформации $P = 5$ кбар. Заметим,

что $P = 5$ кбар, используемая в эксперименте, является относительно большой деформацией, при $P \approx 10$ кбар образцы разрушались.

4.5 Краткие итоги

- Уточнена теоретическая модель акцептора марганца в арсениде галлия и рассчитана тонкая структура уровней во внешних полях деформации и магнитном поле. Сравнение с экспериментальными данными теоретически рассчитанных переходов между основным состоянием с полным моментом $F = 1$ и первым возбужденным состоянием $F = 2$ позволило установить величину локальных случайных полей, действующих на нейтральный акцептор марганца. Установлена зависимость от внешней деформации константы обменного взаимодействия локализованной дырки и электронов $3d$ оболочки марганца.

Заключение

В диссертации получены следующие основные результаты:

- Развита теория спиновой релаксации электронов в квантовых ямах с магнитными примесями, учитывающая их спин-спиновые корреляции. Такие корреляции могут быть вызваны косвенным обменным взаимодействием через делокализованные носители (РККИ). При низких температурах возникает дополнительный вклад в скорость спиновой релаксации из-за флуктуирующего обменного поля, созданного коррелированными магнитными спинами. По мере увеличения температуры спиновые корреляции ослабляются, а спиновая релаксация электронов замедляется до значения, определяемого независимыми от температуры процессами рассеяния с переворотом спина на одиночном центре. Увеличение концентрации носителей, обуславливающих косвенный обмен, способствует усилению спиновых корреляций и, тем самым, ускоряет релаксацию электронного спина.
- Разработана теория релаксации спина марганца и рассчитан его эффективный g -фактор в магнитном полупроводнике $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$. Определены их зависимости от температуры, включая ферромагнитную и парамагнитную фазы. Обнаружено два основных механизма спиновой релаксации марганца, связанные с наличием дырок. В арсениде галлия, легированном марганцем, дырки проявляют себя двояко: как переносчики магнитного взаимодействия между центрами марганцев и как канал для их спиновой релаксации. Сильное спин-орбитальное взаимодействие дырок приводит к коротким временам их спиновой релаксации, а обменное взаимодействие дырок с $3d^5$ электрона-

ми марганца вызывает его быструю спиновую релаксацию. Данный механизм спиновой релаксации марганца доминирует в парамагнитной фазе, а в ферромагнитной фазе основной механизм спиновой релаксации Mn связан с флуктуациями спина дырок.

- Оценена температура Кюри в гетероструктурах GaAs с Mn δ -слоем, расположенным в окрестности квантовой ямы $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ и ее зависимость от глубины квантовой ямы. Температура Кюри состоит из двух вкладов, первый связан с магнетизмом внутри слоя и не зависит от КЯ, второй - с косвенным обменным взаимодействием через дырки КЯ. Второй вклад имеет немонотонную зависимость от глубины КЯ, связанную с попаданием энергии локализованного состояния магнитного центра в энергетическую полосу заполненных состояний КЯ.
- Разработана теория косвенного обменного взаимодействия для магнитных адатомов, расположенных на поверхности графена. Наличие резонансных локализованных состояний в адатомах усиливает взаимодействие всякий раз, когда энергия состояния, связанного с адатомом лежит в области энергий занятых состояний в графене. Важным свойством резонансного косвенного обмена в графене является то, что, в отличие от нерезонансной теории РККИ в графене, тип взаимодействия (ферромагнитный или антиферромагнитный) является одинаковым независимо от типа связи адатомов с подрешетками A и B. Взаимодействие является ферромагнитным на небольших расстояниях, если уровень энергии связанного состояния лежит в зоне проводимости и антиферромагнитным для уровня энергии связанного состояния, лежащего в валентной зоне.
- Представлена теоретическая модель, объясняющая эффект гигантского магнитосопротивления (эффект спинового клапана) и кулоновской блокады в углеродных нанотрубках с присоединенными магнитными молекулами.

Предлагаемая модель качественно объясняет гигантское магнитосопротивление, а также структуру кулоновских алмазов в нелинейном транспорте в углеродной нанотрубке с присоединенными к ней магнитными молекулами. Развитая теория гигантского магнитосопротивления в углеродных нанотрубках с одиночными магнитными молекулами предсказывает дальнедействующее взаимодействие между ними, обусловленное кулоновским взаимодействием электронов в нанотрубке и их резонансным спин-зависимым рассеянием на молекулах.

- Продемонстрировано, что спин-спиновое взаимодействие (включая его знак) магнитных молекул, присоединенных к углеродной нанотрубке, зависит от напряжения на затворе и положений молекул. Для антиферромагнитного упорядочения спинов магнитных молекул величина магнитосопротивления также зависит от значения напряжения затвора, что приводит к возникновению затворно управляемого эффекта спинового клапана.
- Уточнена теоретическая модель акцептора марганца в арсениде галлия и рассчитана тонкая структура уровней во внешних полях деформации и магнитном поле. Сравнение с экспериментальными данными теоретически рассчитанных переходов между основным состоянием с полным моментом $F = 1$ и первым возбужденным состоянием $F = 2$ позволило установить величину локальных случайных полей, действующих на нейтральный акцептор марганца. Установлена зависимость от внешней деформации константы обменного взаимодействия локализованной дырки и электронов $3d$ оболочки марганца.

Основные результаты диссертационной работы изложены в публикациях:

- [A1] I.V. Krainov, M. Vladimirova, D. Scalbert, E. Lahderanta, A. P. Dmitriev, and N. S. Averkiev. Carrier spin relaxation in diluted magnetic quantum wells: Effect of Mn spin correlations // *Phys. Rev. B* **96**, 165304 (2017).
- [A2] I.V. Krainov, V.F. Sapega, N.S. Averkiev, G.S. Dimitriev, K.H. Ploog, and E. Lahderanta. Manganese spin dephasing mechanisms in ferromagnetic (Ga,Mn)As // *Phys. Rev. B* **92**, 245201 (2015).
- [A3] I.V. Krainov, N.S. Averkiev and E. Lahderanta. Manganese spin relaxation in ferromagnetic (Ga,Mn)As // *Low Temp. Phys.* **43**, 449 (2017).
- [A4] I.V. Rozhansky, I.V. Krainov, N.S. Averkiev and E. Lahderanta. Resonant exchange interaction in semiconductors // *Phys. Rev. B* **88**, 155326 (2013).
- [A5] I.V. Rozhansky, I.V. Krainov, N.S. Averkiev, B.A. Aronzon, A.B. Davydov, K.I. Kugel, V. Tripathi, and E. Lahderanta. Resonant indirect exchange via spatially separated two-dimensional channel // *Applied Phys. Lett.* **106**, 252402 (2015).
- [A6] I.V. Krainov, I.V. Rozhansky, N.S. Averkiev and E. Lahderanta. Indirect exchange interaction between magnetic adatoms in graphene // *Phys. Rev. B* **92**, 155432 (2015).
- [A7] I.V. Krainov, J. Klier, A.P. Dmitriev, S. Klyatskaya, M. Ruben, W. Wernsdorfer, I.V. Gornyi. Giant Magnetoresistance in Carbon Nanotubes with Single-Molecule Magnets TbPc₂ // *ACS Nano* **11**, 6868 (2017).
- [A8] I.V. Krainov, J. Debus, N.S. Averkiev, G.S. Dimitriev, V.F. Sapega, and E. Lahderanta. Fine structure of the Mn acceptor in GaAs // *Phys. Rev. B* **93**, 235202 (2016).

Автор выражает благодарность своему научному руководителю Н.С. Аверкиеву. Работа под его руководством была очень полезной и интересной. Также хочется выразить благодарность В.Ф. Сапеге, И.В. Рожанскому, А.П. Дмитриеву, совместная работа с которыми была чрезвычайно увлекательной.

Литература

- [1] Spintronics: a spin-based electronics vision for the future / S. Wolf, D. Awschalom, B. R.A. et al. // *Science*. — 2001. — Vol. 294. — Pp. 1488–1495.
- [2] Optical orientation / Ed. by F. Meier, B. Zakharchenya. — North-Holland, Amsterdam, 1984. — Vol. 8 of *Modern Problems in Condensed Matter Science Series*.
- [3] Spin Physics in Semiconductors / Ed. by M. I. Dyakonov. Springer series in solid-state sciences. — 2008.
- [4] Theory of ferromagnetic (iii,mn)v semiconductors / T. Jungwirth, J. Sinova, J. Masek et al. // *Rev. Mod. Phys.* — 2006. — Vol. 78. — Pp. 809–864.
- [5] *Gatteschi D., Sessoli R., Villain J.* Molecular nanomagnets. Mesoscopic physics and nanotechnology ; 5. — Oxford [u.a.]: Oxford University Press, 2006.
- [6] *Bogani Lapo, Wernsdorfer Wolfgang.* Molecular spintronics using single-molecule magnets // *Nat Mater.* — 2008. — Vol. 7, no. 3. — Pp. 179–186. — 10.1038/nmat2133.
- [7] Surface confinement of tbpc2-smms: structural, electronic and magnetic properties / E. Moreno Pineda, T. Komeda, K. Katoh et al. // *Dalton Trans.* — 2016. — Vol. 45. — Pp. 18417–18433.
- [8] *Bartolomé J., Luis F., Fernández J. F.* Molecular Magnets: Physics and Applications. NanoScience and Technology. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2014.

- [9] *Jia C., Guo X.* Molecule-electrode interfaces in molecular electronic devices // *Chem. Soc. Rev.* — 2013. — Vol. 42. — Pp. 5642–5660.
- [10] Terahertz spin precession and coherent transfer of angular momenta in magnetic quantum wells / S. A. Crooker, J. J. Baumberg, F. Flack et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 1996. — Vol. 77. — Pp. 2814–2817.
- [11] Optical spin resonance and transverse spin relaxation in magnetic semiconductor quantum wells / S. A. Crooker, D. D. Awschalom, J. J. Baumberg et al. // *Phys. Rev. B.* — 1997. — Vol. 56. — Pp. 7574–7588.
- [12] Carrier spin dynamics in $\text{cdte}/\text{cd}_{1-x}\text{mn}_x\text{te}$ quantum wells / R. Akimoto, K. Ando, F. Sasaki et al. // *Phys. Rev. B.* — 1997. — Vol. 56, no. 15. — Pp. 9726–9733.
- [13] Electron and hole spin relaxation in modulation-doped CdMnTe quantum wells / C. Camilleri, F. Teppe, D. Scalbert et al. // *Phys. Rev. B.* — 2001. — Vol. 64, no. 8. — Pp. 085331–7.
- [14] Electron spin dephasing in Mn-based II-VI diluted magnetic semiconductors / Z. Ben Cheikh, S. Cronenberger, M. Vladimirova et al. // *Phys. Rev. B.* — 2013. — Vol. 88, no. 20. — P. 201306.
- [15] *Semenov Y. G.* Electron spin relaxation in semiconductors and semiconductor structures // *Phys. Rev. B.* — 2003. — Vol. 67. — P. 115319.
- [16] *Cygorek M., Tamborenea P. I., Axt V. M.* Carrier-impurity spin transfer dynamics in paramagnetic ii-vi diluted magnetic semiconductors in the presence of a wave-vector-dependent magnetic field // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 93, no. 20. — P. 205201.
- [17] Ferromagnetic resonance in $(\text{ga,mn})\text{as}$ / M. Rubinstein, A. Hanbicki, P. Lubitz et al. // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.* — 2002. — Vol. 250, no. 0. — Pp. 164 – 169.
- [18] Magnetization relaxation in $(\text{ga,mn})\text{as}$ ferromagnetic semiconductors / J. Sinova, T. Jungwirth, X. Liu et al. // *Phys. Rev. B.* — 2004. — Vol. 69. — P. 085209.

- [19] Picosecond dynamics of the photoinduced spin polarization in epitaxial (ga,mn)as films / A. V. Kimel, G. V. Astakhov, G. M. Schott et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2004. — Vol. 92. — P. 237203.
- [20] Dynamics of photoinduced magnetization rotation in ferromagnetic semiconductor (ga,mn)as / Y. Mitsumori, A. Oiwa, T. Śłupinski et al. // *Phys. Rev. B.* — 2004. — Vol. 69. — P. 033203.
- [21] Ultrafast magneto-optical kerr study of standing spin waves in ferromagnetic gamnas films / D. M. Wang, Y. H. Ren, X. Liu et al. // *Phys. Rev. B.* — 2007. — Vol. 75. — P. 233308.
- [22] Excitation of spin waves in ferromagnetic (ga,mn)as layers by picosecond strain pulses / M. Bombeck, A. S. Salasyuk, B. A. Glavin et al. // *Phys. Rev. B.* — 2012. — Vol. 85. — P. 195324.
- [23] Manganese spin dephasing mechanisms in ferromagnetic (ga,mn)as / I. V. Krainov, V. F. Sapega, N. S. Averkiev et al. // *Phys. Rev. B.* — 2015. — Vol. 92. — P. 245201.
- [24] Ferromagnetic resonance study of the free-hole contribution to magnetization and magnetic anisotropy in modulation-doped $ga_{1-x}mn_xas/ga_{1-y}al_yas:be$ / X. Liu, W. L. Lim, M. Dobrowolska et al. // *Phys. Rev. B.* — 2005. — Vol. 71. — P. 035307.
- [25] Ferromagnetic resonance of $ga_{0.93}mn_{0.07}As$ thin films with constant mn and variable free-hole concentrations / K. Khazen, H. J. von Bardeleben, J. L. Cantin et al. // *Phys. Rev. B.* — 2008. — Vol. 77. — P. 165204.
- [26] Śliwa C., Dietl T. Magnitude and crystalline anisotropy of hole magnetization in (Ga, Mn)As // *Phys. Rev. B.* — 2006. — Vol. 74. — P. 245215.
- [27] Ultrafast dynamics of four-state magnetization reversal in (ga,mn)as / Y. Zhu, X. Zhang, T. Li et al. // *Applied Physics Letters.* — 2009. — Vol. 94, no. 14.

- [28] Coherent magnetization precession in ferromagnetic (ga,mn)as induced by picosecond acoustic pulses / A. V. Scherbakov, A. S. Salasyuk, A. V. Akimov et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2010. — Vol. 105. — P. 117204.
- [29] The essential role of carefully optimized synthesis for elucidating intrinsic material properties of (ga,mn)as / P. Nemeč, V. Novak, N. Tesarova et al. // *Nat. Comm.* — 2013. — Vol. 4. — P. 2426.
- [30] Fine structure of the mn acceptor in gaas / I. V. Krainov, J. Debus, N. S. Averkiev et al. // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 93. — P. 235202.
- [31] Ruderman M. A., Kittel C. Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons // *physical review.* — 1954. — Vol. 96, no. 1. — Pp. 99–102.
- [32] Dietl T., Haury A., d'Aubigné Y. M. Free carrier-induced ferromagnetism in structures of diluted magnetic semiconductors // *Phys. Rev. B.* — 1997. — Vol. 55, no. 6. — Pp. R3347–R3350.
- [33] Observation of a ferromagnetic transition induced by two-dimensional hole gas in modulation-doped CdMnTe quantum wells / A. Haury, A. Wasiela, A. Arnoult et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 1997.
- [34] Multiple transfer of angular momentum quanta from a spin-polarized hole to magnetic ions in $\text{zn}_{1-x}\text{mn}_x\text{se}/\text{zn}_{1-y}\text{be}_y\text{se}$ quantum wells / A. V. Akimov, A. V. Scherbakov, D. R. Yakovlev et al. // *Phys. Rev. B.* — 2006. — Vol. 73. — P. 165328.
- [35] Zeeman effect of the magnetic excitations in a diluted magnetic semiconductor: A raman scattering study of $\text{cd}_{1-x}\text{mn}_x\text{te}$ / A. Petrou, D. L. Peterson, S. Venugopalan et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 1982. — Vol. 48. — Pp. 1036–1039.
- [36] Spin-flip raman scattering in n-type diluted magnetic semiconductors / D. L. Peterson, D. U. Bartholomew, U. Debska et al. // *Phys. Rev. B.* — 1985. — Vol. 32. — Pp. 323–340.

- [37] Raman scattering study of the magnetic excitations in diluted magnetic semiconductors in the presence of an external magnetic field / A. Petrou, D. L. Peterson, S. Venugopalan et al. // *Phys. Rev. B.* — 1983. — Vol. 27. — Pp. 3471–3482.
- [38] *Sapega V., Ruf T., Cardona M.* Spin-flip raman study of exchange interactions in bulk gaas:mn // *physica status solidi (b)*. — 2001. — Vol. 226, no. 2. — Pp. 339–356.
- [39] Electronic structure of mn ions in (ga,mn)as diluted magnetic semiconductor / V. F. Sapega, M. Moreno, M. Ramsteiner et al. // *Phys. Rev. B.* — 2002. — Vol. 66. — P. 075217.
- [40] *Liu X., Furdyna J. K.* Ferromagnetic resonance in $\text{ga}_{1-x}\text{mn}_x$ as dilute magnetic semiconductors // *J. Phys. Condens. Matter.* — 2006. — Vol. 18. — P. R245.
- [41] *Kittel C.* Theory of ferromagnetic resonance in rare earth garnets. i. g values // *Phys. Rev.* — 1959. — Vol. 115. — Pp. 1587–1590.
- [42] Exchange constant and domain wall width in (ga,mn)(as,p) films with self-organization of magnetic domains / S. Haghgoo, M. Cubukcu, H. J. von Bardeleben et al. // *Phys. Rev. B.* — 2010. — Vol. 82. — P. 041301.
- [43] Magnetic anisotropy, spin pinning, and exchange constants of (ga,mn)as films / Y.-Y. Zhou, Y.-J. Cho, Z. Ge et al. // *Magnetics IEEE Transactions on.* — 2007. — Vol. 43, no. 6. — Pp. 3019–3021.
- [44] Spin-wave resonances and surface spin pinning in $\text{ga}_{1-x}\text{mn}_x$ as thin films / C. Bihler, W. Schoch, W. Limmer et al. // *Phys. Rev. B.* — 2009. — Vol. 79. — P. 045205.
- [45] Ultrafast probes of nonequilibrium hole spin relaxation in the ferromagnetic semiconductor gamnas / A. Patz, T. Li, X. Liu et al. // *Phys. Rev. B.* — 2015. — Vol. 91. — P. 155108.

- [46] *Dietl T., Ohno H., Matsukura F.* Hole-mediated ferromagnetism in tetrahedrally coordinated semiconductors // *Phys. Rev. B.* — 2001. — Vol. 63. — P. 195205.
- [47] Hole spin polarization in the exchange field of the dilute magnetic (ga,mn)as semiconductor studied by means of polarized hot-electron photoluminescence spectroscopy / V. F. Sapega, N. I. Sablina, I. E. Panaiotti et al. // *Phys. Rev. B.* — 2009. — Vol. 80. — P. 041202.
- [48] Dynamic spin polarization by orientation-dependent separation in a ferromagnet semiconductor hybrid / V. Korenev, I. Akimov, S. Zaitsev et al. // *Nat. Commun.* — 2012. — Vol. 3. — P. 959.
- [49] Ferromagnetic effect of a mn delta layer in the gaas barrier on the spin polarization of carriers in an ingaas/gaas quantum well / S. Zaitsev, M. Dorokhin, A. Brichkin et al. // *JETP Letters.* — 2010. — Vol. 90, no. 10. — Pp. 658–662.
- [50] *Zaitsev S. V.* Magneto-optics of heterostructures with an ingaas/gaas quantum well and a ferromagnetic delta-layer of mn // *Low Temperature Physics.* — 2012. — Vol. 38. — Pp. 399–412.
- [51] Quantum, normal and anomalous hall effect in 2d ferromagnetic structures: Gaas/ingaas/gaas quantum well with remote mn delta-layer / B. Aronzon, A. Davydov, M. Goiran et al. // *Journal of Physics: Conference Series.* — 2013. — Vol. 456. — P. 012001.
- [52] Noise studies of magnetization dynamics in dilute magnetic semiconductor heterostructures / V. Tripathi, K. Dhochak, B. A. Aronzon et al. // *Phys. Rev. B.* — 2012. — Vol. 85. — P. 214401.
- [53] *Ruderman M. A., Kittel C.* Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons // *Phys. Rev.* — 1954. — Vol. 96. — Pp. 99–102.

- [54] *Parhizgar F., Rostami H., Asgari R.* Indirect exchange interaction between magnetic adatoms in monolayer mos_2 // *Phys. Rev. B.* — 2013. — Vol. 87. — P. 125401.
- [55] *Mastrogiuseppe D., Sandler N., Ulloa S. E.* Rkky interaction and intervalley processes in p -doped transition-metal dichalcogenides // *Phys. Rev. B.* — 2014. — Vol. 90. — P. 161403.
- [56] Resonant enhancement of indirect exchange interaction in semiconductor heterostructures / I. V. Rozhansky, N. S. Averkiev, I. V. Krainov, E. Lähderanta // *physica status solidi (a)*. — 2014. — Vol. 211, no. 5. — Pp. 1048–1054.
- [57] Resonant indirect exchange in 1d semiconductor nanostructures / I. V. Rozhansky, I. V. Krainov, N. S. Averkiev, E. Lähderanta // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.* — 2015. — Vol. 383. — Pp. 34 – 38.
- [58] *Fano U.* Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts // *Phys. Rev.* — 1961. — Vol. 124, no. 6. — Pp. 1866–1878.
- [59] *Rozhansky I. V., Averkiev N. S., Lähderanta E.* Tunneling magnetic effect in heterostructures with paramagnetic impurities // *Phys. Rev. B.* — 2012. — Vol. 85. — P. 075315.
- [60] *Bardeen J.* Tunnelling from a many-particle point of view // *Phys. Rev. Lett.* — 1961. — Vol. 6. — Pp. 57–59.
- [61] *Mueller E.* Scattering tutorial. — 2002.
- [62] *Aristov D. N.* Indirect rkky interaction in any dimensionality // *Phys. Rev. B.* — 1997. — Vol. 55. — Pp. 8064–8066.
- [63] Charge inhomogeneities and transport in semiconductor heterostructures with a δ -layer / V. Tripathi, K. Dhochak, B. A. Aronzon et al. // *Phys. Rev. B.* — 2011. — Vol. 84. — P. 075305.

- [64] Magnetism in a mn modulation-doped inas/ingaas heterostructure with a two-dimensional hole system / B. Rupprecht, W. Krenner, U. Wurstbauer et al. // *J. Appl. Phys.* — 2010. — Vol. 107. — P. 093711.
- [65] title = Curie temperature versus hole concentration in field-effect structures of $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$, / Y. Nishitani, D. Chiba, M. Endo et al. // *Phys. Rev. B.* — 2010. — Vol. 81. — P. 045208.
- [66] Effects of a nearby mn delta layer on the optical properties of an ingaas/gaas quantum well / M. A. G. Balanta, M. J. S. P. Brasil, F. Iikawa et al. // *Journal of Applied Physics.* — 2014. — Vol. 116, no. 20. — P. 203501.
- [67] Ferromagnetism of low-dimensional mn-doped iii-v semiconductor structures in the vicinity of the insulator-metal transition / B. A. Aronzon, M. A. Pankov, V. V. Rylkov et al. // *J. Appl. Phys.* — 2010. — Vol. 107, no. 2. — P. 023905.
- [68] Structural and transport properties of gaas/?-mn/gaas/in x ga 1? x as/gaas quantum wells / B. A. Aronzon, M. V. Kovalchuk, E. M. Pashaev et al. // *Journal of Physics: Condensed Matter.* — 2008. — Vol. 20. — P. 145207.
- [69] Ferromagnetic gaas structures with single mn delta-layer fabricated using laser deposition / Y. A. Danilov, O. V. Vikhrova, A. V. Kudrin, B. N. Zvonkov // *J. Nanosci. Nanotechn.* — 2012. — Vol. 12. — P. 5122.
- [70] *Myers R. C., Gossard A. C., Awschalom D. D.* Tunable spin polarization in iii-v quantum wells with a ferromagnetic barrier // *Phys. Rev. B.* — 2004. — Vol. 69. — P. 161305.
- [71] Controlling the curie temperature in (ga,mn)as through location of the fermi level within the impurity band / M. Dobrowolska, K. Tivakornsasithorn, X. Liu et al. // *Nature Materials.* — 2012. — Vol. 11. — P. 444.
- [72] High curie temperatures at low compensation in the ferromagnetic semiconductor (ga,mn)as / M. Wang, K. W. Edmonds, B. L. Gallagher et al. // *Phys. Rev. B.* — 2013. — Vol. 87. — P. 121301.

- [73] Antisite effect on hole-mediated ferromagnetism in (ga,mn)as / R. C. Myers, B. L. Sheu, A. W. Jackson et al. // *Phys. Rev. B.* — 2006. — Vol. 74. — P. 155203.
- [74] *Power S. R., Ferreira M. S.* Indirect exchange and ruderman-kittel-kasuya-yosida (rkky) interactions in magnetically-doped graphene // *Crystals.* — 2013. — Vol. 3, no. 1. — P. 49.
- [75] *Saremi S.* Rkky in half-filled bipartite lattices: Graphene as an example // *Phys. Rev. B.* — 2007. — Vol. 76. — P. 184430.
- [76] *Brey L., Fertig H. A., Das Sarma S.* Diluted graphene antiferromagnet // *Phys. Rev. Lett.* — 2007. — Vol. 99. — P. 116802.
- [77] *Black-Schaffer A. M.* Rkky coupling in graphene // *Phys. Rev. B.* — 2010. — Vol. 81. — P. 205416.
- [78] A first-principles study on magnetic coupling between carbon adatoms on graphene / I. C. Gerber, A. V. Krashennnikov, A. S. Foster, R. M. Nieminen // *New J. Phys.* — 2010. — Vol. 12. — P. 113021.
- [79] *Sherafati M., Satpathy S.* Rkky interaction in graphene from the lattice green's function // *Phys. Rev. B.* — 2011. — Vol. 83. — P. 165425.
- [80] *Kogan E.* Rkky interaction in graphene // *Phys. Rev. B.* — 2011. — Vol. 84. — P. 115119.
- [81] *Sherafati M., Satpathy S.* Analytical expression for the rkky interaction in doped graphene // *Phys. Rev. B.* — 2011. — Vol. 84. — P. 125416.
- [82] A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres et al. // *Rev. Mod. Phys.* — 2009. — Vol. 81. — Pp. 109–162.
- [83] *Volkov V. A., Zagorodnev I. V.* Electrons near a graphene edge // *Low Temperature Physics.* — 2009. — Vol. 35, no. 1. — Pp. 2–5.

- [84] Resonant indirect exchange via spatially separated two-dimensional channel / I. V. Rozhansky, I. V. Krainov, N. S. Averkiev et al. // *Applied Physics Letters*. — 2015. — Vol. 106, no. 25. — P. 252402.
- [85] *Saffarzadeh A., Kirczenow G.* Scanning tunneling spectroscopy and dirac point resonances due to a single co adatom on gated graphene // *Phys. Rev. B*. — 2012. — Vol. 85. — P. 245429.
- [86] Tuning charge and correlation effects for a single molecule on a graphene device / V. W. Brar, R. Decker, H.-M. Solowan et al. // *Nat. Phys.* — 2011. — Vol. 7. — Pp. 43–47.
- [87] Towards molecular spintronics / Rocha Alexandre R., Garcia-suarez Victor M., Bailey Steve W. et al. // *Nat Mater.* — 2005. — Vol. 4, no. 4. — Pp. 335–339. — 10.1038/nmat1349.
- [88] *Sanvito S.* Molecular spintronics // *Chem. Soc. Rev.* — 2011. — Vol. 40. — Pp. 3336–3355.
- [89] Transformation of spin information into large electrical signals using carbon nanotubes / Hueso Luis E., Pruneda Jose M., Ferrari Valeria et al. // *Nature*. — 2007. — Vol. 445, no. 7126. — Pp. 410–413. — 10.1038/nature05507.
- [90] Robust spin crossover and memristance across a single molecule / Miyamachi Toshio, Gruber Manuel, Davesne Vincent et al. // *Nature Communications*. — 2012. — Vol. 3. — P. 938.
- [91] Supramolecular spin valves / M. Urdampilleta, S. Klyatskaya, J.-P. Cleuziou et al. // *Nature Materials*. — 2011. — Vol. 10. — P. 502.
- [92] Electric field controlled magnetic anisotropy in a single molecule / A. S. Zyazin, J. W. G. van den Berg, E. A. Osorio et al. // *Nano Letters*. — 2010. — Vol. 10, no. 9. — Pp. 3307–3311.

- [93] Galperin M., Nitzan A. Molecular optoelectronics: the interaction of molecular conduction junctions with light // *Phys. Chem. Chem. Phys.* — 2012. — Vol. 14. — Pp. 9421–9438.
- [94] Molecular-scale dynamics of light-induced spin cross-over in a two-dimensional layer / Bairagi Kaushik, Iasco Olga, Bellec Amandine et al. // *Nature Communications.* — 2016. — Vol. 7. — P. 12212.
- [95] Observation and electric current control of a local spin in a single-molecule magnet / Komeda Tadahiro, Isshiki Hironari, Liu Jie et al. // *Nature Communications.* — 2011. — Vol. 2. — P. 217.
- [96] Electrical control over the fe(ii) spin crossover in a single molecule: Theory and experiment / V. Meded, A. Bagrets, K. Fink et al. // *Phys. Rev. B.* — 2011. — Vol. 83. — P. 245415.
- [97] Covalently bonded single-molecule junctions with stable and reversible photoswitched conductivity / C. Jia, A. Migliore, N. Xin et al. // *Science.* — 2016. — Vol. 352, no. 6292. — Pp. 1443–1445.
- [98] Determination of Ligand-Field Parameters and f-Electronic Structures of Double-Decker Bis(phthalocyaninato)lanthanide Complexes / N. Ishikawa, M. Sugita, T. Okubo et al. // *Inorganic Chemistry.* — 2003. — Vol. 42, no. 7. — Pp. 2440–2446. — PMID: 12665381.
- [99] Upward Temperature Shift of the Intrinsic Phase Lag of the Magnetization of Bis(phthalocyaninato)terbium by Ligand Oxidation Creating an $S = 1/2$ Spin / Ishikawa Naoto, Sugita Miki, Tanaka Naohiro et al. // *Inorganic Chemistry.* — 2004. — Vol. 43, no. 18. — Pp. 5498–5500. — doi: 10.1021/ic049348b.
- [100] Single-molecule magnets / G. Christou, D. Gatteschi, D. N. Hendrickson, R. Sessoli // *MRS Bulletin.* — 2000. — Vol. 25, no. 11. — Pp. 66–71.
- [101] Preparation of Novel Materials Using SMMs / A. Cornia, A. F. Costantino, L. Zobbi et al. // *Single-Molecule Magnets and Related Phenomena* / Ed. by

- R. Winpenny. — Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2006. — Pp. 133–161.
- [102] Direct Observation of Lanthanide(III)-Phthalocyanine Molecules on Au(111) by Using Scanning Tunneling Microscopy and Scanning Tunneling Spectroscopy and Thin-Film Field-Effect Transistor Properties of Tb(III)- and Dy(III)-Phthalocyanine Molecules / K. Katoh, Y. Yoshida, M. Yamashita et al. // *Journal of the American Chemical Society*. — 2009. — Vol. 131, no. 29. — Pp. 9967–9976. — PMID: 19569681.
- [103] A new approach to grafting a monolayer of oriented mn12 nanomagnets on silicon / B. Fleury, L. Catala, V. Huc et al. // *Chem. Commun.* — 2005. — Pp. 2020–2022.
- [104] Self-assembly and magnetism of mn12 nanomagnets on native and functionalized gold surfaces / A. Naitabdi, J.-P. Bucher, P. Gerbier et al. // *Advanced Materials*. — 2005. — Vol. 17, no. 13. — Pp. 1612–1616.
- [105] Polycationic mn12 single-molecule magnets as electron reservoirs with $s > 10$ ground states / E. Coronado, A. Forment-Aliaga, A. Gaita-Arino et al. // *Angewandte Chemie International Edition*. — 2004. — Vol. 43, no. 45. — Pp. 6152–6156.
- [106] Magneto-optical investigations of nanostructured materials based on single-molecule magnets monitor strong environmental effects / L. Bogani, L. Cavigli, M. Gurioli et al. // *Advanced Materials*. — 2007. — Vol. 19, no. 22. — Pp. 3906–3911.
- [107] Mononuclear lanthanide complexes with a long magnetization relaxation time at high temperatures: A new category of magnets at the single-molecular level / N. Ishikawa, M. Sugita, T. Ishikawa et al. // *The Journal of Physical Chemistry B*. — 2004. — Vol. 108, no. 31. — Pp. 11265–11271.

- [108] Landau-zener tunneling of a single tb^{3+} magnetic moment allowing the electronic read-out of a nuclear spin / M. Urdampilleta, S. Klyatskaya, M. Ruben, W. Wernsdorfer // *Phys. Rev. B.* — 2013. — Vol. 87. — P. 195412.
- [109] Molecular quantum spintronics: Supramolecular spin valves based on single-molecule magnets and carbon nanotubes / M. Urdampilleta, N.-V. Nguyen, J.-P. Cleuziou et al. // *International Journal of Molecular Sciences.* — 2011. — Vol. 12, no. 10. — P. 6656.
- [110] *Hammar H., Fransson J.* Time-dependent spin and transport properties of a single-molecule magnet in a tunnel junction // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 94. — P. 054311.
- [111] *Aligia A. A., Roura-Bas P., Florens S.* Impact of capacitance and tunneling asymmetries on coulomb blockade edges and kondo peaks in nonequilibrium transport through molecular quantum dots // *Phys. Rev. B.* — 2015. — Vol. 92. — P. 035404.
- [112] *Luo G., Park K.* Magnetic-anisotropy-induced spin blockade in a single-molecule transistor // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 94. — P. 174412.
- [113] *Łłomińska A., Weymann I.* Nontrivial magnetoresistive behavior of a single-wall carbon nanotube with an attached molecular magnet // *Phys. Rev. B.* — 2015. — Vol. 92. — P. 205419.
- [114] *Miroshnichenko A., Flach S., Kivshar Y.* Fano resonances in nanoscale structures // *Rev. Mod. Phys.* — 2010. — Vol. 82. — Pp. 2257–2298.
- [115] *Hong K., Kim W. Y.* Fano resonance driven spin valve effect using single molecule magnets // *Angewandte Chemie International Edition.* — 2013. — Vol. 52, no. 12. — Pp. 3389–3393.
- [116] *Nazarov J. V., Blanter Y. M.* Quantum transport : introduction to nanoscience. — 1. publ. edition. — Cambridge [u.a.]: Cambridge Univ. Press, 2009.

- [117] Electrical readout of individual nuclear spin trajectories in a single-molecule magnet spin transistor / S. Thiele, R. Vincent, M. Holzmann et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2013. — Vol. 111. — P. 037203.
- [118] Electronic structure of surface-supported bis(phthalocyaninato) terbium(iii) single molecular magnets / L. Vitali, S. Fabris, A. M. Conte et al. // *Nano Lett.* — 2008. — Vol. 8 (10). — P. 3364.
- [119] Electrically driven nuclear spin resonance in single-molecule magnets / S. Thiele, F. Balestro, R. Ballou et al. // *Science.* — 2014. — Vol. 344, no. 6188. — Pp. 1135–1138.
- [120] Strong spin-phonon coupling between a single-molecule magnet and a carbon nanotube nanoelectromechanical system / M. Ganzhorn, S. Klyatskaya, M. Ruben, W. Wernsdorfer // *Nature Nanotechnology.* — 2013. — Vol. 8. — Pp. 165–169.
- [121] *Beenakker C. W. J.* Theory of coulomb-blockade oscillations in the conductance of a quantum dot // *Phys. Rev. B.* — 1991. — Vol. 44. — Pp. 1646–1656.
- [122] Surface-enhanced raman signal for terbium single-molecule magnets grafted on graphene / M. Lopes, A. Candini, M. Urdampilleta et al. // *ACS Nano.* — 2010. — Vol. 4, no. 12. — Pp. 7531–7537.
- [123] Electronic excitation spectrum of metallic carbon nanotubes / S. Sapmaz, P. Jarillo-Herrero, J. Kong et al. // *Phys. Rev. B.* — 2005. — Vol. 71. — P. 153402.
- [124] Electron transport through double quantum dots / W. G. van der Wiel, S. De Franceschi, J. M. Elzerman et al. // *Rev. Mod. Phys.* — 2002. — Vol. 75. — Pp. 1–22.
- [125] *Matveev K. A., Glazman L. I., Baranger H. U.* Coulomb blockade of tunneling through a double quantum dot // *Phys. Rev. B.* — 1996. — Vol. 54. — Pp. 5637–5646.

- [126] Excitation of spin waves in ferromagnetic (ga,mn)as layers by picosecond strain pulses / M. Bombeck, A. S. Salasyuk, B. A. Glavin et al. // *Phys. Rev. B.* — 2012. — Vol. 85. — P. 195324.
- [127] Control of magnetic anisotropy by external fields in ferromagnetic (ga,mn)as / V. Sapega, I. Kraynov, N. Sablina et al. // *Solid State Communications.* — 2013. — Vol. 157, no. 0. — Pp. 34 – 37.
- [128] Epitaxy of (ga, mn)as, a new diluted magnetic semiconductor based on gaas / A. Shen, H. Ohno, F. Matsukura et al. // *Journal of Crystal Growth.* — 1997. — Vol. 175. — Pp. 1069 – 1074. — Molecular Beam Epitaxy 1996.
- [129] Magnetic domain structure and magnetic anisotropy in $ga_{1-x}mn_xAs$ / U. Welp, V. K. Vlasko-Vlasov, X. Liu et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2003. — Vol. 90. — P. 167206.
- [130] *Schairer W., Schmidt M.* Strongly quenched deformation potentials of the mn acceptor in gaas // *Phys. Rev. B.* — 1974. — Vol. 10. — Pp. 2501–2506.
- [131] Electronic structure of the neutral manganese acceptor in gallium arsenide / J. Schneider, U. Kaufmann, W. Wilkening et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 1987. — Vol. 59. — Pp. 240–243.
- [132] N. Averkiev, A. Gutkin, E. Osipov, M. Reshchikov // *Fiz. Tverd. Tela.* — 1988. — Vol. 30. — P. 765.
- [133] Electronic structure of the $gaas:mn_{ga}$ scenter / M. Linnarsson, E. Janzén, B. Monemar et al. // *Phys. Rev. B.* — 1997. — Vol. 55. — Pp. 6938–6944.
- [134] Manganese spin dephasing mechanisms in ferromagnetic (ga,mn)as / I. V. Krainov, V. F. Sapega, N. S. Averkiev et al. // *Phys. Rev. B.* — 2015. — Vol. 92. — P. 245201.
- [135] N. Averkiev, A. Gudkin, N. Kolchanova, M. Reshikov // *Fiz. Techn. Poluprovodnikov.* — 1984. — Vol. 18. — P. 1629.

- [136] Spatial distribution of a hole localized on acceptor in deformed crystal /
A. Monakhov, N. Sablina, N. Averkiev et al. // *Solid State Communications*. —
2008. — Vol. 146, no. 9–10. — Pp. 416 – 419.
- [137] Warping a single mn acceptor wavefunction by straining the gaas host /
A. M. Yakunin, A. Y. Silov, P. M. Koenraad et al. // *Nat. Mater.* — 2007. —
Vol. 6. — Pp. 512–515.