

Вклад спинового упорядочения электронных состояний примесей железа, кобальта и никеля в низкотемпературную магнитную восприимчивость кристаллов селенида ртути

Т.Е. Говоркова¹, А.Т. Лончаков¹, В.И. Окулов¹, М.Д. Андрийчук², А.Ф. Губкин¹,
Л.Д. Паранчич²

¹Институт физики металлов УрО РАН, ул. С. Ковалевской, 18, г. Екатеринбург, 620137, Россия
E-mail: okulov@imp.uran.ru

²Черновицкий национальный университет, ул. Коцюбинского, 2, г. Черновцы, 58012, Украина

Статья поступила в редакцию 1 декабря 2014 г., опубликована онлайн 22 декабря 2014 г.

Проведен анализ магнитной восприимчивости электронных систем гибридизированных состояний примесей железа, кобальта и никеля в кристаллах селенида ртути при низких температурах в связи с недавно обнаруженными свидетельствами спонтанной спиновой поляризации в аномальном эффекте Холла при комнатной температуре. Показано, что в измеренной парамагнитной восприимчивости электронов гибридизированных состояний содержится не зависящая от температуры часть, которую с достаточным основанием можно отождествить с вкладом спонтанной поляризации. Другая часть, демонстрирующая при понижении температуры закон Кюри в температурной зависимости, отвечает вкладу неполяризованных электронов. На основании таких представлений в намагниченности рассмотренных примесных систем определена доля спонтанно поляризованной электронной плотности в локализованной компоненте гибридизированных состояний. Даны количественные оценки упомянутых долей для каждой примеси.

Проведено аналіз магнітної сприйнятливості електронних систем гібридизованих станів домішок заліза, кобальту та нікелю в кристалах селеніду ртуті при низьких температурах в зв'язку із нещодавно виявленими свідченнями спонтанної спінової поляризації в аномальному ефекті Холла при кімнатній температурі. Показано, що у вимірній парамагнітній сприйнятливості електронів гібридизованих станів міститься не залежна від температури частина, яку з достатньою підставою можна ототожнити з вкладом спонтанної поляризації. Інша частина, що демонструє при пониженні температури закон Кюрі в температурній залежності, відповідає вкладу неполяризованих електронів. На підставі таких уявлень в намагніченості домішкових систем, які розглянуто, визначено долю спонтанно поляризованої електронної щільності в локалізованій компоненті гібридизованих станів. Подано кількісні оцінки часток для кожної домішки.

PACS: 72.80.Ey III–V и II–VI полупроводники;

72.25.Dc Спин-поляризованный транспорт в полупроводниках.

Ключевые слова: примеси переходных элементов в полупроводниках, гибридизированные электронные состояния, низкотемпературная магнитная восприимчивость, спонтанная намагниченность.

Введение

Решение актуальных задач в области физики полупроводников с примесями переходных элементов естественным образом приводит к необходимости изучения температурной зависимости примесной магнитной восприимчивости. Примером такого рода служит настоящая работа, касающаяся тех явлений в данной области, которые обусловлены гибридизацией электрон-

ных состояний энергетических уровней примесных атомов низкой концентрации с состояниями полосы проводимости кристалла. Исследования низкотемпературной магнитной восприимчивости системы электронов в гибридизированных состояниях позволяют обнаруживать характерные закономерности поведения этой системы и обеспечивать адекватное теоретическое описание ее свойств.

В ходе этих исследований разработаны основы теоретического описания температурной зависимости магнитной восприимчивости [1,2], выполнены эксперименты и дана количественная интерпретация полученных данных на кристаллах селенида ртути с примесями железа [3], кобальта [4] и никеля [5] низкой концентрации.

Главный результат проведенных экспериментальных исследований магнетизма упомянутых примесных систем состоит в подобии низкотемпературных зависимостей их восприимчивостей, описываемых законом Кюри–Вейсса. Предложенная теорией [2,3] простая формула для концентрационной зависимости константы Кюри в восприимчивости локализованной компоненты электронной плотности гибридных состояний позволяет определить из экспериментальных данных эффективные значения примесных спинов, а также долю донорных электронов в коллективе электронов проводимости кристалла. Теперь же можно считать, что открылся новый этап в изучении магнитной восприимчивости электронов гибридных состояний. В экспериментах по наблюдению аномального эффекта Холла, проведенных в связи с обнаружением сильного обменного усиления в примесных вкладах в теплоемкость [6] и модули упругости [7], было установлено существование спонтанной спиновой поляризации (спонтанного намагничивания) изучаемой системы донорных электронов в кристаллах селенида ртути с примесями железа при комнатной температуре [8]. Такой же результат был получен на кристаллах с примесями других переходных элементов [9]. Спонтанное намагничивание проявилось также в наблюдениях гистерезиса в полевых зависимостях магнитосопротивления [9].

В связи с результатами, доказывающими существование спонтанной намагниченности рассматриваемой системы электронов, следует определить характер его проявлений и в низкотемпературной магнитной восприимчивости. Изучение таких проявлений представляет собой задачу, актуальную как для правильного описания самой восприимчивости, так и для дальнейшего развития представлений о спонтанной намагниченности исследуемых систем. Этой задаче и посвящена настоящая работа.

Определение вклада спонтанной намагниченности в низкотемпературную магнитную восприимчивость электронов в гибридных состояниях

Рассматривавшаяся ранее температурная зависимость магнитной восприимчивости χ исследуемых низкоконцентрированных примесных систем в низкотемпературном интервале описывалась известной формулой:

$$\chi = \chi_0 + \chi_s = \chi_0 + C/(T + \theta), \quad (1)$$

в которой не зависящее от температуры слагаемое χ_0 содержит вклады диамагнетизма и парамагнетизма ионного остова, а второе слагаемое χ_s отражает вклад спинового парамагнетизма локализованной электронной плотности. Согласно теории [2,3], развитой применительно к изучаемым кристаллам с упомянутыми выше примесями 3d-элементов (железа, кобальта и никеля), константа Кюри C была представлена в виде суммы: $C = C_v + C_{\text{hybr}}$, где C_v относится к электронам тех состояний примесного атома, которые расположены в валентной полосе кристалла, а C_{hybr} характеризует систему электронов гибридных состояний в полосе проводимости. Физическую природу происхождения температуры θ можно связывать с обменным взаимодействием электронов или с другими механизмами, обеспечивающими конечность восприимчивости при $T \rightarrow 0$. Результаты цитированных выше работ [3–5] получены при использовании моделирования величин C_v и C_{hybr} с помощью обоснованного введения параметров электронной системы и выполнении затем количественного описания экспериментальных данных по температурной зависимости восприимчивости большого набора кристаллов с различными концентрациями примесей. В итоге были найдены параметры, определяющие константы Кюри, и величины θ и χ_0 без учета спонтанной намагниченности локализованной компоненты состояний электронной системы.

Приступая к выполнению модификации формулы (1) для учета существования спонтанной намагниченности электронов, следует принять во внимание прежде всего необходимость для решения такой задачи полного отделения в спиновой восприимчивости χ_s различных примесных вкладов от состояний в валентной полосе и от гибридных состояний в полосе проводимости. Полагая, что электроны в валентной полосе не подвержены поляризации, записываем восприимчивость χ_s в следующем виде:

$$\chi_s = \chi_v + \chi_{\text{hybr}} = C_v/(T + \theta_v) + \chi_{\text{hybr}}. \quad (2)$$

Как и в предыдущем рассмотрении, восприимчивость χ_v можно отождествить с той частью парамагнитной восприимчивости, которая наблюдается при концентрациях примесей, меньших граничного значения, отвечающего началу проявлений эффектов гибридизации. Для константы Кюри в этом интервале концентраций принимаем известное выражение:

$$C_v = 4\mu_0^2 n_i S(S+1)/(3k),$$

где μ_0 — магнетон Бора, n_i — концентрация примесей, k — постоянная Больцмана, S — спин той части d-оболочки атома примеси, энергия которой расположена в валентной полосе энергий кристалла. Совокупность имеющихся данных по исследуемым нами кри-

сталлам достаточно надежно свидетельствует о том, что в валентной полосе энергий расположены состояния пяти примесных $3d$ -электронов, тогда как у остальных $3d$ -электронов (одного у атома железа, двух у атома кобальта, трех у атома никеля) состояния оказываются в полосе проводимости и гибридизируются. В соответствии с этим можно считать, что $S = 5/2$.

Переходя далее к рассмотрению вклада электронов гибридизированных состояний в восприимчивость, определим сначала способ его выделения. Это можно сделать, основываясь на изложенном выше определении восприимчивости χ_v . Структура системы дает основания считать, что с достаточной точностью относительная величина слагаемого $\chi_0 + \chi_v$ в полной восприимчивости не изменяется при переходе от низких концентраций (до интервала гибридизации) внутрь интервала гибридизации. Другими словами, если ввести относительное значение $(\chi_0 + \chi_v)/n_i = \chi_{den}$, то эта величина будет одинакова как до интервала гибридизации, так и внутри него. Поэтому вклад гибридизации в магнитную восприимчивость определяется формулой

$$\chi_{hybr} = \chi - n_i \chi_{den}. \quad (3)$$

Обращаясь теперь к основной задаче — обнаружению проявлений спонтанной намагниченности — рассматриваем интервал температур, низких по сравнению с температурой упорядочения, которая для изучаемых объектов не меньше комнатной. В этом интервале спонтанная намагниченность не зависит от температуры и содержится, следовательно, в постоянном слагаемом восприимчивости χ_{hybr} , поскольку иных постоянных слагаемых, кроме χ_0 , в полной восприимчивости нет. Сохраняя форму закона Кюри–Вейсса для восприимчивости χ_{hybr} и умножая ее на напряженность магнитного поля H , записываем выражение для намагниченности локализованной компоненты гибридизированных состояний электронов следующим образом:

$$\chi_{hybr} H = M_{spont} + C_{hybr}^p H / (T + \theta_p). \quad (4)$$

Первое слагаемое здесь — спонтанная намагниченность, которую представим в виде $M_{spont} = \mu_0 n_i p_{sp}$, p_{sp} — доля спонтанной поляризации локализованной электронной плотности частично поляризованного состояния; второе слагаемое — парамагнитный вклад неполяризованной части частично поляризованного состояния, соответствующую константу Кюри можно записать в виде

$$C_{hybr}^p = 4\mu_0^2 n_i S_e (S_e + 1) / (3k),$$

вводя эффективный спин S_e ; θ_p — параметр температурной зависимости парамагнитного состояния.

Формулы (2)–(4) и изложенные выше пояснения к ним служат основой для экспериментального изучения роли спонтанной спиновой поляризации и намагничивания в физических свойствах систем электронов в гибридизированных состояниях. Этими формулами на феноменологическом уровне введено понятие частичной спонтанной поляризации электронной плотности, локализованной на примесном атоме, и создана основа для количественной интерпретации экспериментальных данных по температурной зависимости магнитной восприимчивости.

Анализ экспериментальных данных

На основе изложенного выше подхода проанализированы экспериментальные данные по низкотемпературной магнитной восприимчивости кристаллов селенида ртути с примесями железа, кобальта и никеля для обнаружения проявлений спонтанной намагниченности системы электронов в гибридизированных примесных состояниях. На рис. 1 приведены данные по температурной зависимости восприимчивости образцов кристаллов с каждой из примесей, выбранных по величинам концентраций, отвечающим достаточно значительной спонтанной намагниченности. Далее, согласно изложенной выше схеме интерпретации, определены в итоге детального рассмотрения экспериментальных данных характерные температурные зависимости вклада парамагнитной восприимчивости от состояний в валентной полосе χ_v и постоянная часть восприимчивости χ_0 . Затем найдена модельная восприимчивость $n_i \chi_{den}$ для концентраций каждого из образцов, отраженных на рис. 1. Темпера-

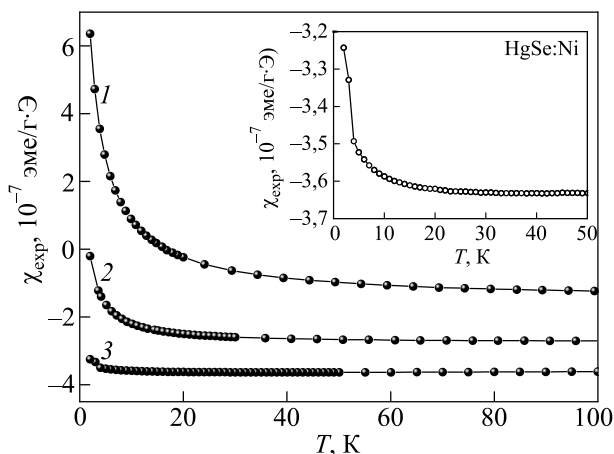


Рис. 1. Температурные зависимости магнитной восприимчивости χ_{exp} кристаллов селенида ртути с примесями железа — $N_{Fe} = 5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (1), кобальта — $N_{Co} = 2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (2), никеля — $N_{Ni} = 1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (3). Вставка: низкотемпературный интервал ($T = 2\text{--}50 \text{ К}$) для кристаллов с примесями никеля (той же концентрации).

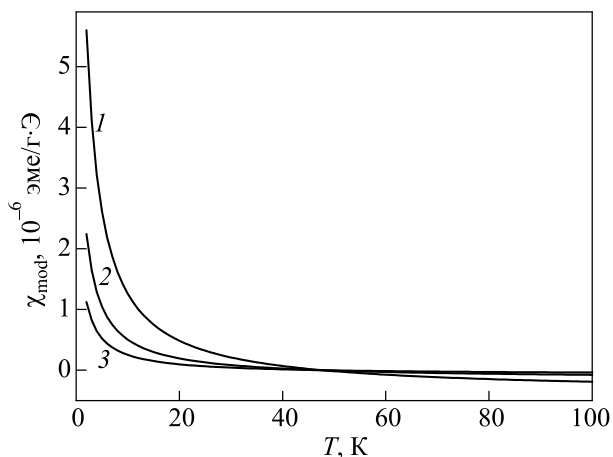


Рис. 2. Модельные температурные зависимости примесной магнитной восприимчивости $n_i\chi_{den}$ кристаллов селенида ртути с примесями железа — $N_{Fe} = 5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (1), кобальта — $N_{Co} = 2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (2), никеля — $N_{Ni} = 1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (3) (величина χ_{den} определена по измерениям восприимчивости кристаллов с концентрациями примесей ниже интервала гибридизации).

турные зависимости восприимчивостей $n_i\chi_{den}$ приведены на рис. 2. Результаты определения восприимчивости χ_{hybr} по формуле (3) показаны на рис. 3. В итоге выполнения подгонки зависимостей рис. 3 кривыми, задаваемыми формулой (4), получены значения спонтанной намагниченности, отвечающие частичной спиновой поляризации локализованной электронной плотности.

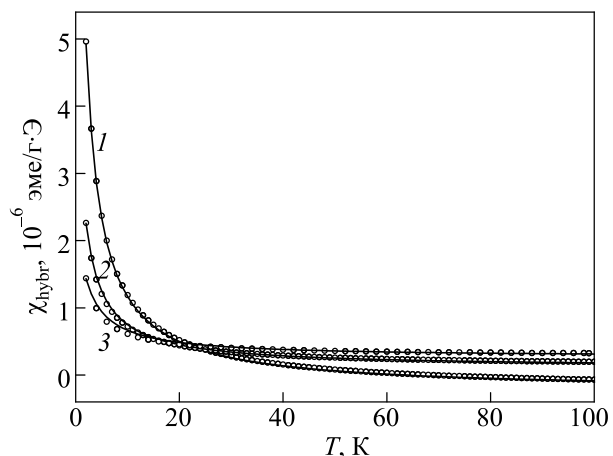


Рис. 3. Вклад магнитной восприимчивости гибридных электронных состояний χ_{hybr} в полную магнитную восприимчивость кристаллов селенида ртути с примесями железа — $N_{Fe} = 5 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (1), кобальта — $N_{Co} = 2 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (2), никеля — $N_{Ni} = 1 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ (3). Символы — экспериментальные значения, сплошные линии — подгоночные зависимости, полученные по формуле (4). Полученные значения доли спонтанной поляризации p_{sp} равны: для примесей железа — 0,2, для примесей кобальта — 1,1, для примесей никеля — 2,8.

Результаты и выводы

Предложена методика интерпретации данных по температурной зависимости магнитной восприимчивости кристаллов с примесями переходных элементов в условиях существования спонтанной намагниченности системы электронов в гибридных примесных состояниях. При этом показана возможность определения величины спонтанной намагниченности и степени поляризации локализованной электронной плотности гибридных состояний в рассмотренных экспериментах. Применение данной методики для исследования низкотемпературной восприимчивости кристаллов селенида ртути с примесями железа, кобальта и никеля позволило подтвердить существование спонтанной намагниченности и впервые определить степень поляризации электронной системы.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (грант №12-02-00530) и программы ОФН РАН (грант №12-02-Т-1016).

1. В.И. Окулов, *ФММ* **100**, 23 (2005).
2. В.И. Окулов, Е.А. Памятных, А.В. Гергергт, *ФММ* **101**, 11 (2006).
3. В.И. Окулов, Г.А. Альшанский, В.Л. Константинов, А.В. Королев, Э.А. Нейфельд, Л.Д. Сабирзянова, Е.А. Памятных, С.Ю. Паранчич, *ФНТ* **30**, 558 (2004) [*Low Temp. Phys.* **30**, 417 (2004)].
4. В.И. Окулов, Г.А. Альшанский, Т.Е. Говоркова, В.Л. Константинов, А.В. Королев, Е.А. Памятных, С.Ю. Паранчич, *ФММ* **108**, 124 (2009).
5. Т.Е. Govorkova, A.F. Gubkin, A.T. Lonchakov, V.I. Okulov, M.A. Andriichuk, L.D. Paranchich, to be published in: *Solid State Phenom.* (2015).
6. В.И. Окулов, А.Т. Лончаков, Т.Е. Говоркова, К.А. Окулова, С.М. Подгорных, Л.Д. Паранчич, С.Ю. Паранчич, *ФНТ* **37**, 281 (2011) [*Low Temp. Phys.* **37**, 220 (2011)].
7. В.И. Окулов, В.В. Гудков, И.В. Жевстовских, А.Т. Лончаков, Л.Д. Паранчич, С.Ю. Паранчич, *ФНТ* **37**, 443 (2011) [*Low Temp. Phys.* **37**, 347 (2011)].
8. А.Т. Лончаков, В.И. Окулов, Т.Е. Говоркова, М.Д. Андрийчук, Л.Д. Паранчич, *Письма ЖЭТФ* **96**, 444 (2012).
9. А.Т. Lonchakov, V.I. Okulov, E.A. Pamyatnykh, T.E. Govorkova, M.A. Andriichuk, L.D. Paranchich, S.V. Bobin, and V.V. Deryushkin, to be published in: *Solid State Phenom.* (2015).

Contribution of spin ordering of impurity electron states of iron, cobalt and nickel to low-temperature magnetic susceptibility of mercury selenide crystals

T.E. Govorkova, A.T. Lonchakov, V.I. Okulov, M.D. Andriichuk, A.F. Gubkin, and L.D. Paranchich

Magnetic susceptibility of electron systems of hybridized impurity states of iron, cobalt and nickel has

been analyzed in mercury selenide crystals at low temperatures with allowance for the evidences of spontaneous spin polarization of these systems revealed by us recently at room temperature. It is shown that measured paramagnetic susceptibility of the electron hybridized states involves a temperature-independent part which can be identified with the contribution of spontaneous spin polarization. The other part, showing the Curie law with decreasing temperature, corresponds to the nonpolarized electron contribution. Based on these concepts we determined a fraction of spontaneously polarized electron density in the

localized component of the hybridized states in the magnetization of the impurity systems considered. Quantitative estimations of the above-mentioned contributions are quoted for each impurity.

PACS: 72.80.Ey III–V and II–VI semiconductors;
72.25.Dc Spin polarized transport in semiconductors.

Keywords: transition element impurities in semiconductors, hybridized electron states, low-temperature magnetic susceptibility, spontaneous magnetization.