

## О фононном эффекте Холла в парамагнитном диэлектрике

А. В. Инюшкин<sup>1)</sup>, А. Н. Талденков

Российский научный центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 17 мая 2007 г.

После переработки 26 июля 2007 г.

Проведено исследование фононного эффекта Холла в парамагнитном диэлектрическом гранате  $Tb_3Ga_5O_{12}$ . Найдено, что коэффициент фононного эффекта Холла является положительным и составляет  $(3.5 \pm 2) \cdot 10^{-5} \text{ Тл}^{-1}$  в магнитном поле 3 Тл при температуре 5.13 К. Полученные результаты являются экспериментальным подтверждением фононного эффекта Холла в парамагнитном диэлектрике, обнаруженного Стромом, Риккеном и Вайдером [C. Strohm, G. L. J. A. Rikken, and P. Wyder, Phys. Rev. Lett. **95**, 155901 (2005)].

PACS: 66.70.+f, 72.15.Gd, 72.20.Pa

В электрических проводниках при наличии электрического и теплового потоков магнитное поле порождает целую совокупность термогальваномагнитных явлений, среди которых отметим активно исследуемый и широко применяемый на практике эффект Холла, а также его “тепловой” аналог – эффект Риги-Ледюка. В классическом эффекте Холла магнитное поле  $\mathbf{H}$  создает поперечный ток в направлении, перпендикулярном исходному току и магнитному полю, причем эффект нечетный по полю, его величина пропорциональна  $H$ , а направление поперечного тока зависит от знака носителей заряда. В диэлектриках, в которых невозможен макроскопический электрический ток, невозможен и классический эффект Холла. Однако это утверждение оказывается несправедливым для теплового аналога эффекта Холла в диффузионных процессах переноса. Например, уже более 40 лет известен эффект Бинакера-Зейнфтлибена [1, 2] – появление нечетного поперечного переноса тепла в тепловом потоке в газе с несферическими нейтральными молекулами при наличии магнитного поля. Источником эффекта Бинакера-Зейнфтлибена является прецессия магнитных моментов молекул в магнитном поле [3]. Не менее удивительным было наблюдение отклонения светового потока магнитным полем – так называемого “фотонного эффекта Холла” [4]. Он проявляется в разупорядоченных сильно-рассеивающих средах, таких как смесь магнитооптически активных рассеивателей и пассивной матрицы, при диффузионном режиме распространения света. Фотонный эффект Холла обусловлен анизотропией рассеяния фотонов, которая возникает из-за интерференционных эффектов

при многократном рассеянии фотонов в поперечном магнитном поле.

Недавно Стром, Риккен и Вайдер [5] экспериментально обнаружили “фононный эффект Холла”, а именно, появление градиента температуры в направлении, перпендикулярном приложенному магнитному полю и тепловому потоку в диэлектрическом парамагнитном гранате  $Tb_3Ga_5O_{12}$  (TGG) при низких температурах. Мотивация поиска фононного эффекта Холла основывалась на аналогии между диффузным распространением фотонов и фононов в твердых телах. В качестве объекта исследований был выбран монокристалл TGG, поскольку он является ионным кристаллом, в котором ионы  $Tb^{3+}$  имеют большой магнитный момент (электронный спин  $S = 3$ , орбитальный момент  $L = 3$ , в основном состоянии полный угловой момент  $J = 6$  и  $g_z = 3/2$ ), и в нем имеется сильное магнитное рассеяние фононов согласно данным по температурной зависимости теплопроводности  $\kappa(T)$  [6]. В эксперименте [5] было найдено, что в прямоугольной пластине TGG с размерами  $15.7 \times 5.7 \times 0.67$  мм возникает нечетная по полю поперечная разность температур  $\Delta T_y$ , равная примерно 200 мкК, в магнитном поле 3 Тл при средней температуре 5.45 К и продольной разности температур  $\Delta T_x \approx 1$  К. Оказалось также, что  $\Delta T_y$  есть линейная функция приложенного поля ( $1 < H < 4$  Тл) и продольного перепада  $\Delta T_x$ , а коэффициент фононного эффекта Холла  $S = (\nabla_y T / \nabla_x T) / H \approx 1 \cdot 10^{-4} \text{ Тл}^{-1}$ ,  $\nabla_x T$  и  $\nabla_y T$  есть продольная и поперечная компоненты градиента температуры. К сожалению, измерения были проведены на неориентированном образце TGG, поэтому дополнительно не известна ориентация векторов  $\nabla T$  и  $\mathbf{H}$  относительно кристаллографических направлений. Кроме

<sup>1)</sup>e-mail: inyushkin@imp.kiae.ru

того, авторы не определяли знак фононного эффекта Холла.

Шенг, Шенг и Тинг [7], а также Каган и Максимов [8] показали, что фононный эффект Холла может быть обусловлен анизотропией рассеяния фононов на парамагнитных ионах из-за спин-орбитального взаимодействия фононов с подмагнитченными в магнитном поле спинами ионов. Связь фононов с локализованными спинами ионов  $Tb^{3+}$  обеспечивает рамановское взаимодействие, появляющееся в результате фононной модуляции электрического кристаллического поля, которое определяет в значительной степени энергетическую структуру основного мультиплета иона тербия. В кубическом кристалле TGG (пространственная группа симметрии  $O_h^{10}-Ia\bar{3}d$ , 8 формульных единиц в элементарной ячейке) “нормальные” ионы  $Tb^{3+}$  занимают 6 неэквивалентных додекаэдрических позиций с точечной группой симметрии  $D_2$ . Низкосимметричное кристаллическое поле, действующее на некрамерсовский ион тербия, полностью снимает вырождение основного мультиплета и формирует квазидублет в основном состоянии со щелью  $\approx 3$  К, следующий синглет имеет энергию 49 К [9, 10]. Магнитное поле оказывает сильное влияние на энергетическую структуру. Так в поле 3 Тл, приложенном вдоль оси [100], зеemanовское расщепление основного квазидублета составляет 30 К [10].

Кристаллы TGG, выращенные методом Чохральского, а именно такие использовались в нашей работе и работе [5], содержат до 2% сверхстехиометричных ионов  $Tb^{3+}$  в октаэдрических позициях галлия (точечная группа симметрии  $C_{3i}$ ). Низкоэнергетическая часть спектра этих ионов очевидно отличается от спектра “нормальных” ионов  $Tb^{3+}$ . Резонансное рассеяние фононов на ионах тербия является главным процессом, определяющим температурную зависимость теплопроводности при низких температурах. При этом избыточные ионы тербия играют важную роль в определении величины теплопроводности при температурах порядка 10 К [6].

Одним из важных предсказаний теории Шенга и др. [7] является положительный знак фононного эффекта Холла. Однако определение знака, данное в этой работе, является обратным по сравнению с общепринятым – эффект положительный, если  $\nabla_x T$ ,  $\nabla_y T$  и  $\mathbf{H}$  составляют правую тройку векторов (см., например, [11]). То есть фактически Шенг и др. предсказали отрицательный знак фононного эффекта Холла в TGG. Отметим, что в работе [5] знак эффекта не измерялся.

В настоящей работе мы представляем результаты измерений величины и знака фононного эффекта

Холла в тербиевом галлат-гранате на ориентированных образцах.

Образцы в виде прямоугольных пластин с характерными размерами  $26 \times 4 \times 0.5$  мм были вырезаны из монокристалла TGG, выращенного методом Чохральского. Нормаль к широкой грани образцов совпадала с кристаллографическим направлением (100). Измерения были выполнены на трех образцах, два из которых имели длинное ребро вдоль оси (100), а один – вдоль (110).

Экспериментальная ячейка с образцом, показанная схематично на рис.1, помещалась в вакуумную

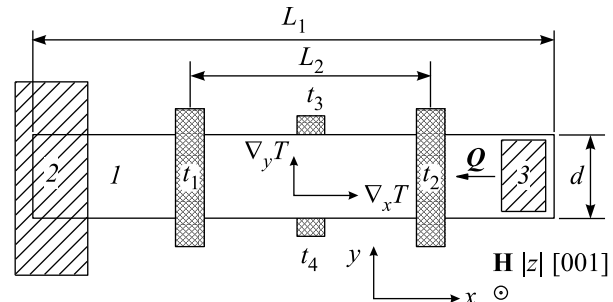


Рис.1. Схематическое изображение экспериментальной ячейки и направление тепловых потоков в образце: 1 – кристалл TGG; 2 – медный блок с нагревателем терморегулятора; 3 – нагреватель для создания градиента температуры;  $t_1, t_2, t_3, t_4$  – термометры

камеру. Один конец образца 1 прижимался к медному блоку 2, который имел тепловой контакт с жидким гелием. Электрический нагреватель 3, приклеенный к свободному концу образца, создавал тепловой поток  $\mathbf{Q}$ . На образце размещались 4 термометра  $t_j$  ( $j = 1 \dots 4$ ) для измерения температур  $T_j$  в точках их закрепления. Использовались термометры сопротивления типа Cernox (LakeShore Cryotronics, Inc.), обладающие высокой температурной чувствительностью 500 Ом/К и пренебрежимо малым магнетосопротивлением в полях до 3 Тл при температуре около 5 К. Термометры  $t_1$  и  $t_2$  прикреплялись к образцу механическими зажимами, и служили для определения средней температуры и продольной разности температур  $\Delta T_x = T_2 - T_1$ . При этом термометр  $t_1$  был включен в систему регулирования температуры образца. Расстояние  $L_2$  между термометрами  $t_1$  и  $t_2$  составляло примерно 14 мм. С помощью миниатюрных термометров  $t_3$  и  $t_4$ , приклеенных на боковые грани образца, измеряли поперечную разность  $\Delta T_y = T_3 - T_4$ . Полная длина  $L_1$  и ширина  $d$  выбирались такими, чтобы образец был достаточно длинным, то есть  $L_2/d > 3$ , и искривление температурного поля вблизи изотермических зажимов термомет-

ров  $t_1$  и  $t_2$  не приводило к существенному влиянию на величину  $\Delta T_y$ .

Разности температур на образце измеряли с помощью метода стационарного теплового потока в два этапа – при выключенном (off) и включенном (on) нагревателе 3. После установления стационарного состояния выполнялось измерение температур  $T_j$ . Из полученных данных вычислялись величины  $\Delta T_x = \Delta T_x^{(on)} - \Delta T_x^{(off)}$ ,  $\Delta T_y = \Delta T_y^{(on)} - \Delta T_y^{(off)}$  и тангенс угла Холла  $\tan \beta = (\Delta T_y / \Delta T_x) (L_2 / d)$ . Измерение температурных разностей в два этапа дает возможность исключить влияние медленно меняющихся во времени паразитных тепловых потоков в установке. Двухэтапный измерительный цикл повторялся 5–10 раз при положительном и отрицательном направлениях поля  $\mathbf{H}$ . Выделение нечетной по магнитному полю компоненты в  $\tan \beta$  дает коэффициент Холла  $S = [\tan \beta(H) - \tan \beta(-H)] / 2H$ .

Во всех опытах средняя температура образца поддерживалась равной 5.13 К. Продольный перепад температуры устанавливали равным 0.5 К, его временной дрейф был пренебрежимо малым – примерно 5 мкК за измерительный цикл ( $\approx 15$  мин). Среднеквадратичный шум поперечной разности температур составил около 7 мкК (в нулевом поле).

Было проведено в общей сложности 6 опытов по измерению поперечной разности температур. На рис.2 представлены результаты измерений тангенса угла Холла в виде временных диаграмм для двух направлений теплового потока при ориентации приложенного магнитного поля  $H = 3$  Тл вдоль оси  $[001]$ . Рис.2а и 2б демонстрируют зависимости  $\tan \beta(t)$  вдоль  $\langle 100 \rangle$  и  $\langle 110 \rangle$ , соответственно. В некоторых случаях в экспериментальных данных проявлялся заметный температурный дрейф (см., например, рис.2б). Для вычисления коэффициента  $S$  в этом случае из  $\tan \beta(t)$  вычитался линейный временной ход. Полученные данные с очевидностью показывают, что глубина модуляции магнитным полем величины  $\tan \beta$  больше, чем случайная погрешность измерения. Это позволяет с уверенностью сделать вывод о существовании поперечного термомагнитного эффекта. Отметим, что величина поперечной разности температур, возникающей в поле 3 Тл, очень маленькая, например, для данных, представленных на рис.2б, она составляла 12 мкК. Был проведен также контрольный эксперимент, в котором направление поля совпадало с осью  $y$  (см. рис.1), в отличие от работы [5], где в контрольном эксперименте была выбрана продольная геометрия  $\mathbf{H} \parallel y$ . Отсутствие эффекта в геометрии ( $\mathbf{H} \parallel y$ ,  $\mathbf{Q} \parallel x$ ) однозначно свидетельствует о том, что наблюдаемый поперечный тер-

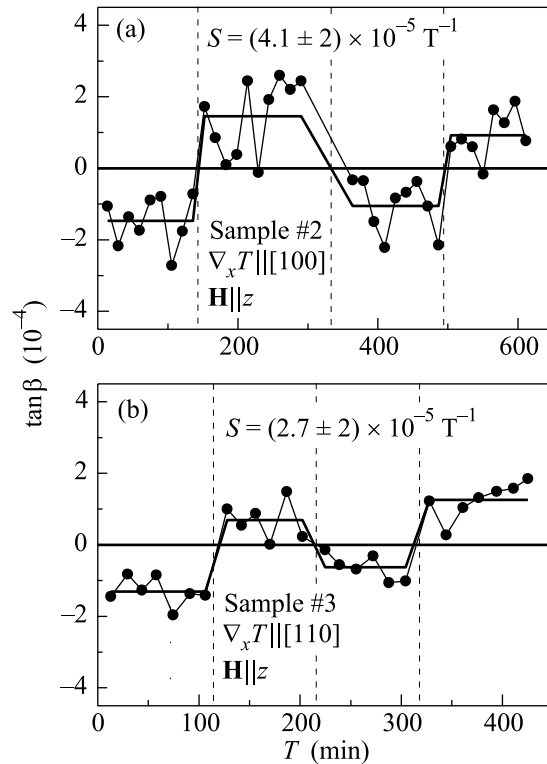


Рис.2. Тангенс угла Холла при изменении направления приложенного магнитного поля  $H = \pm 3$  Тл для двух направлений в кристаллической решетке. Вертикальные прерывистые линии соответствуют моментам смены знака магнитного поля

момагнитный эффект обусловлен  $z$ -компонентой магнитного поля. Этот опыт также показывает, что измерительная методика разработана надлежащим образом, так, что влиянием магнитного поля на термометры и тепловые потоки можно пренебречь.

Из экспериментальных данных следует, что в кристаллах TGG наблюдается фоновый эффект Холла при ориентации магнитного поля  $H = 3$  Тл вдоль направления  $\langle 100 \rangle$  и теплового потока вдоль направлений  $\langle 100 \rangle$  и  $\langle 110 \rangle$  при температуре 5.13 К. Коэффициент  $S$  является положительным, его среднее значение составляет  $(3.5 \pm 2) \cdot 10^{-5} \text{ Тл}^{-1}$  и в пределах экспериментальной погрешности не зависит от ориентации теплового потока. Для определения ошибки  $S$  использовалось правило трех сигм. В этих условиях при  $H = 3$  Тл поперечная теплопроводность  $\kappa_{xy} \approx 2.0 \cdot 10^{-7} \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-1} \cdot \text{К}^{-1}$ , а продольная  $\kappa_{xx} = 1.93 \cdot 10^{-3} \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-1} \cdot \text{К}^{-1}$  ( $\kappa_{xx} = 2.98 \cdot 10^{-3} \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-1} \cdot \text{К}^{-1}$  при  $H = 0$ ).

Полученное нами значение  $S$  оказывается значительно меньше – в три раза – значения, определенно Стромом, Риккеном и Вайдером [5]. Причины расхождения не известны. Теоретически возможно, что

имеется достаточно сильная анизотропия фононного эффекта Холла в зависимости от направления теплового потока, причем допускается, что для главных направлений кристалла (таких, как в нашей работе) величина эффекта меньше [8]. По-видимому, обсуждаемые опыты проводились при разных ориентациях  $\mathbf{H}$  и  $\nabla T$  относительно кристаллических направлений. Из сравнения вида полевых зависимостей теплопроводности  $\kappa_{xx}(H)$  при  $T = 5.13$  К для разных ориентаций  $\mathbf{H}$ , полученных нами и в работе [5], можно предположить, что эксперимент [5] проводился при ориентации поля  $\mathbf{H}$ , близком к направлению  $\langle 111 \rangle$ . Отметим, что температурные зависимости  $\kappa_{xx}(T)$ , измеренные нами и в работе [5], совпадают в пределах 3%, что свидетельствует о сходном качестве монокристаллов TGG.

В работе [7], посвященной теории фононного эффекта Холла, получено простое выражение для поперечной теплопроводности при низких температурах:

$$\kappa_{xy} \simeq \frac{1.64\gamma k_B K M}{2\pi^2 v_m} \frac{k_B T}{\hbar}, \quad (1)$$

где  $\gamma = (5 - \delta)(1 + \delta)^4 / [4\delta^2(9 + 18\delta^3)^{1/3}]$ ,  $\delta = v_L/v_T$ ,  $v_L$  и  $v_T$  – скорости звука продольных и поперечных акустических фононов. Средняя скорость звука  $v_m$  входит в стандартное выражение для температуры Дебая  $T_D = v_m(\hbar/k_B)(6\pi^2 N)^{1/3}$ , где  $N$  есть общее число атомов всех сортов в единице объема кристалла. Предполагая, что упругие свойства TGG не сильно отличаются от других редкоземельных галлатов, мы оцениваем, что  $T_D \approx 520$  К,  $\delta \approx 1.8$  ( $\gamma \approx 3.1$ ) и  $v_m = 4.0 \cdot 10^5$  см  $\cdot$  с $^{-1}$  для TGG. Наша оценка  $v_m$  в 4.7 раза выше значения, использованного в работе [7]. В формуле (1)  $M$  – намагниченность, а постоянная  $K$  характеризует рамановское взаимодействие. Произведение  $K M \hbar$  есть энергетическая шкала этого взаимодействия. Выражение (1) дает значение, совпадающее с экспериментальным, при  $K M \hbar/k_B = 4.9 \cdot 10^{-4} T_D$ . Полагая, что  $M$  есть линейная функция приложенного магнитного поля, мы получаем, что  $K M \hbar/k_B = 1.6 \cdot 10^{-4} T_D$  в поле 1 Тл. Эта величина практически совпадает с оценкой, полученной в работе [7].

Что же касается знака эффекта, то определение, данное в работе [7], соответствует отрицательно-

му знаку, однако из наших экспериментальных данных следует положительный знак фононного эффекта Холла в TGG.

Таким образом, в настоящей работе получено экспериментальное подтверждение наличия фононного эффекта Холла в парамагнитном диэлектрике TGG при низких температурах и определено, что он имеет положительный знак.

Авторы признательны И.А. Иванову (ЗАО Научно-исследовательский институт материаловедения, Москва) за предоставление образцов TGG, помощь в работе и консультации, а также С.Н. Барило (ИФТ-ТиП НАН РБ, Минск) за поддержку и гостеприимство. Авторы приносят особую благодарность Ю.М. Кагану и Л.А. Максимову за обсуждения, интерес к работе и поддержку. Работа выполнена в рамках международного проекта Российского фонда фундаментальных исследований – Белорусского фонда фундаментальных исследований # Бел04-02-81023а.

1. Л. Л. Горелик, В. Г. Николаевский, В. В. Сеницын, Письма в ЖЭТФ **4**, 456 (1966).
2. L. J. F. Hermans, P. H. Fortuin, H. F. P. Knaap, and J. J. M. Beenakker, Phys. Lett. A **25**, 81 (1967).
3. Ю. Каган, Л. А. Максимов, ЖЭФТ **51**, 1983 (1966).
4. G. L. J. A. Rikken and B. A. van Tiggelen, Nature **381**, 54 (1996).
5. C. Strohm, G. L. J. A. Rikken, and P. Wyder, Phys. Rev. Lett. **95**, 155901 (2005). C. Strohm, *Magneto-transverse phonon transport*, PhD Thesis, University of Konstanz, 2003.
6. G. A. Slack and D. W. Oliver, Phys. Rev. B **4**, 592 (1971).
7. L. Sheng, D. N. Sheng, and C. S. Ting, Phys. Rev. Lett. **96**, 155901 (2006).
8. Y. Kagan and L. A. Maximov, Arxiv: 0707.2565v1.
9. J. A. Koningstein and C. J. Kane-Maguire, Can. J. Chem. **52**, 3445 (1974).
10. Н. П. Колмакова, С. В. Копчик, Г. С. Кринчик и др., ФТТ **32**, 1406 (1990). N. P. Kolmakova, R. Z. Levitin, A. I. Popov et al., Phys. Rev. B **41**, 6170 (1990).
11. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, т. VIII, *Электродинамика сплошных сред*, М.: Наука, 1982.