

Экспериментальное обнаружение и теоретическое описание аномального эффекта Холла в спонтанно поляризованной системе электронов гибридизированных примесных состояний

А. Т. Лончаков, В. И. Окулов, Т. Е. Говоркова, М. Д. Андрийчук⁺, Л. Д. Паранчич⁺

Институт физики металлов УрО РАН, 620990 Екатеринбург, Россия

⁺ Черновицкий национальный университет им. Федьковича, 58012 Черновцы, Украина

Поступила в редакцию 18 июля 2012 г.

После переработки 13 августа 2012 г.

В экспериментах по наблюдению эффекта Холла, выполненных при комнатной температуре в кристаллах селенида ртути с примесями железа малой концентрации, обнаружен аномальный не зависящий от напряженности магнитного поля вклад в холловское сопротивление. Показано, что этот вклад обусловлен спонтанной спиновой поляризацией электронной системы примесных гибридизированных состояний. Развито теоретическое объяснение эффекта, основанное на термодинамическом описании недиссипативного электронного тока в системе электронов со спонтанной поляризацией.

Настоящее сообщение посвящено изложению результатов изучения аномального эффекта Холла в системе электронов гибридизированных примесных состояний в полосе проводимости кристалла. В полупроводнике гибридизация электронных состояний примесных атомов переходного d -элемента происходит в узком интервале полосы проводимости, сосредоточенном вблизи энергии резонансного донорного уровня. В таком интервале образуется пик плотности состояний, отвечающий частичной локализации электронной плотности. Связанные с этим явлением низкотемпературные термодинамические и кинетические эффекты исследовались и ранее [1]. Проведенными экспериментами и разработанным теоретическим описанием было обосновано существование гибридизированных состояний данного типа. Эксперименты выполнялись на кристаллах селенида ртути с примесями железа и других $3d$ -элементов – объектах, которые дают возможность изучать достаточно общие закономерности и получать надежные данные о гибридизированных состояниях. В работах [2, 3] были получены экспериментальные данные по температурным зависимостям теплоемкости и модулям упругости в селениде ртути с примесями железа, которые дали основание для вывода о существовании спонтанной спиновой поляризации электронов в интервале гибридизации [4]. В связи с этим стала актуальной задача прямого обнаружения спонтанной поляризации системы электронов в гибридизированных состояниях с помощью наблюдения аномального эффекта Холла. Решение этой задачи является целью настоящей работы. Она включает также разработку соответствующего теоретического описания эффекта

применительно к исследуемой системе для интерпретации экспериментальных данных.

В экспериментах изучались магнитопольевые зависимости эффекта Холла в селениде ртути с примесями железа малой концентрации при комнатной температуре с целью обнаружения нелинейного характера зависимости холловского сопротивления ρ_{xy} от напряженности магнитного поля. Ввиду малости ожидаемого эффекта в работе была решена задача высокоточного измерения холловского напряжения. Погрешность измерения этого параметра не превышала $\pm 2 \cdot 10^{-8}$ В во всем диапазоне его значений. Снижения погрешности удалось достичь благодаря соответствующим мерам по термостатированию контактов и разъемов установки, а также использованию измерительных проводов в специальной тепловой изоляции. Измерения проводились в диапазоне напряженностей магнитных полей H от 0 до 30 кЭ. Для повышения степени достоверности результатов регистрации магнитного поля при измерениях использовалось два преобразователя Холла с разными коэффициентами нелинейности, что, как оказалось, не повлияло на конечные выводы. Основные характеристики исследованных образцов HgSe:Fe, HgSe:Fe,Ga, HgSe:Ga приведены в табл. 1.

На рис. 1 представлена зависимость $\rho_{xy}(H)$ для образца 4. Согласно оценкам в образце с такой концентрацией железа энергия Ферми ϵ_F близка к резонансной энергии ϵ_r примесного уровня и поэтому хорошо выполняется условие для гибридизации электронных состояний и для спонтанной спиновой поляризации. Как видно из рис. 1, зависимость $\rho_{xy}(H)$ для этого образца является заметно нелинейной. Ее

Таблица 1

Основные характеристики образцов при $T = 300$ К

#	I	n_i , 10^8 см^{-3}	σ , $10^3 \text{ см}^{-1} \cdot \text{Ом}^{-1}$	n_c , 10^{18} см^{-3}	μ , $\text{см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$
1	Ga	5	5.31	5.8	5.72
2	Fe	5	6.95	10	4.31
	Ga	10			
3	Fe	2	3.58	2.58	8.69
4	Fe	7	5.07	3.61	8.84
5	Fe	10	4.55	3.75	7.93
6	Fe	40	4.84	4.02	7.56

n_i – концентрация примесных атомов; σ – проводимость; n_c – концентрация электронов проводимости; μ – холловская подвижность электронов

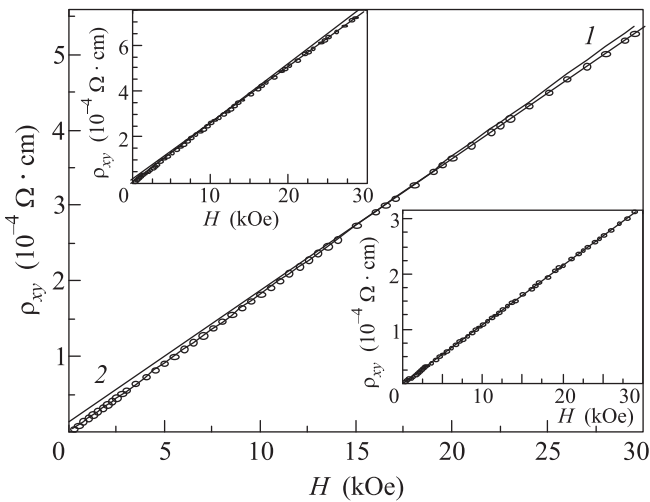


Рис. 1. Зависимость холловского сопротивления ρ_{xy} от напряженности магнитного поля для образцов 4, 3 (вставка в верхнем углу) и 1 (вставка в нижнем углу). Прямая 1 – y_1 , 2 – y_2

можно аппроксимировать двумя прямыми, 1 и 2, с уравнениями $y_1 = \alpha H$ (слабые магнитные поля) и $y_2 = \beta H + \rho_0$ (сильные магнитные поля). Параметры α , β , ρ_0 , приведенные в табл. 2, подгонялись таким образом, чтобы минимизировать отклонение экспериментальных точек от линейной зависимости в области сильных и слабых магнитных полей. Точка пересечения прямых y_1 и y_2 определяет величину $H_s = \rho_0 / (\alpha - \beta)$. Разность $\Delta y(H) = \rho_{\text{linear}} - \rho_{\text{exp}}$ между $\rho_{\text{linear}} = y_1$ и $\rho_{\text{exp}} = \rho_{xy}$ с ростом H отклоняется от нуля и выходит на асимптотику $\Delta \rho = (\alpha - \beta)H - \rho_0$. Эта закономерность продемонстрирована на рис. 2 не только для образца 4, но и для образцов 3, 5, 6. При таком построении величина H_s , зависящая от концентрации примесей, определяется более точно пересечением асимптотики с осью абсцисс. Таким об-

Таблица 2

Параметры подгонки экспериментальных зависимостей

#	I	α , $10^{-4} \text{ Ом} \cdot \text{см} / \text{кЭ}$	β , $10^{-4} \text{ Ом} \cdot \text{см} / \text{кЭ}$	ρ_0 , $10^{-4} \text{ Ом} \cdot \text{см}$	H_s , кЭ
1	Ga	0.1083	0.1083	0	–
2	Fe	0.0623	0.0623	0	–
	Ga				
3	Fe	0.2618	0.2465	0.169	10.7
4	Fe	0.1823	0.1743	0.133	16.2
5	Fe	0.1728	0.1672	0.08	14
6	Fe	0.1607	0.1562	0.067	13.2

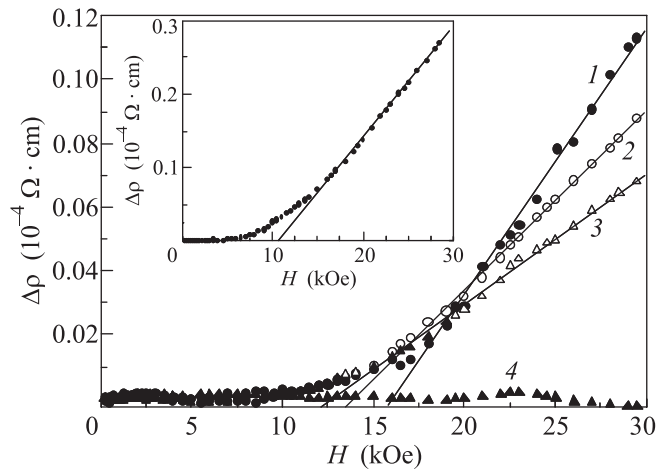


Рис. 2. Зависимость разности $\Delta \rho$ между подгонной прямой ρ_{linear} и экспериментальными значениями ρ_{xy} от напряженности магнитного поля для образцов 4 (кривая 1), 5 (2), 6 (3) и 2 (4). На вставке – зависимость $\Delta \rho$ для образца 3

разом, экспериментальные данные для всех образцов из табл. 1, содержащих только примеси железа, однозначно указывают на изменение угла наклона зависимости $\rho_{xy}(H)$. Это свидетельствует о наличии некоторой добавки в холловском сопротивлении, не зависящей от напряженности поля, что свойственно аномальному эффекту Холла. При этом H_s представляет собой значение напряженности поля, при котором намагниченность, связанная с поляризованными электронами, достигает насыщения. Для сравнения нами были проведены измерения магнитополевой зависимости эффекта Холла на образце селенида ртути, легированном мелким донором – примесями галлия с концентрацией электронов n_e , близкой к значениям для образцов 4–6. Как видно из вставки к рис. 1, при отсутствии в кристалле резонансной донорной примеси аномального эффекта Холла не обнаруживается.

Чтобы доказать экспериментальным путем, что наблюдаемая добавка в $\rho_{xy}(H)$ связана с системой гибридных состояний электронов, в образце селенида ртути, содержащем примеси железа с концентрацией, близкой по величине к концентрации этой примеси в образце 4, было реализовано выполнение условия $\varepsilon_F \gg \varepsilon_r$ с помощью дополнительного легирования примесями галлия (образец 2). В таком случае эффекты гибридизации электронных состояний не проявляются, поскольку энергия Ферми оказывается вне полностью заполненного пика плотности состояний, так что спонтанная спиновая поляризация и связанный с ней аномальный эффект Холла не должны наблюдаться. Представленные на рис. 2 данные для образца 2 (кривая 4) подтверждают это заключение.

При теоретическом описании аномального эффекта Холла в исследуемых системах следует учесть главную их особенность, заключающуюся в малости концентрации поляризованных электронов, т.е. малости спонтанного момента, который по простой оценке может соответствовать магнитной индукции порядка нескольких гаусс. Разработанные известные теории, основы которых изложены в [5], нацелены в основном на изучение эффекта в системах с сильным магнитным упорядочением, когда он предположительно вызван спин-орбитальным взаимодействием и не зависит от приложенного магнитного поля. Тогда величина эффекта пропорциональна параметру спин-орбитального взаимодействия и содержит другие трудно оцениваемые параметры, которые могут вносить дополнительную малость. Применительно к нашим системам это означает, что такой эффект вряд ли мог бы заметно проявиться в силу малости самой спиновой поляризации. Для описанного выше эксперимента основная задача теории состоит в определении измеряемой величины ρ_0 , которая относится к системе в достаточно сильном магнитном поле, обеспечивающем ориентацию всего спонтанного магнитного момента M_0 вдоль направления напряженности поля. Ориентированный магнитный момент проводящей компоненты электронной системы благодаря появлению его неоднородности в приложенном электрическом поле, вызывающем локальное изменение энергии Ферми, создает дополнительную к силе Лоренца силу, действующую на электроны. В результате возникает дополнительный вклад в холловский ток, не зависящий от напряженности магнитного поля. Такая физическая картина отвечает хорошо известному факту, заключающемуся в существовании части холловского тока, которая возникает в локально равновесной электронной системе в скрещенных

электрическом и магнитном полях. Теория тока в локальном равновесии (недиссипативного электронного тока) как часть теории недиссипативных явлений переноса была разработана применительно к системам в квантующем магнитном поле и изложена в книге [6] и статье [7]. Для нашей цели она может быть применена и в условиях слабого влияния магнитного поля на орбитальное движение. Основу применяемого подхода составляет развитое в физической кинетике представление о вызывающем ток статическом электрическом поле как о статистической силе, описываемой градиентом локально равновесного электрохимического потенциала $\delta\zeta(\mathbf{r})$, добавляемого к равновесному химическому потенциалу электронов. Связанная с ним локально равновесная линейная добавка к равновесной функции распределения электронов f_ν , зависящей от энергии ε_ν с квантовыми числами ν , записывается при учете квантовых эффектов намагничивания в виде матричных элементов добавки $\delta\rho_{\nu\nu'}^L$ к равновесной матрице плотности:

$$\delta\rho_{\nu\nu'}^L = -[(f_\nu - f_{\nu'})/(\varepsilon_\nu - \varepsilon_{\nu'})] \int d\mathbf{r} n_{\nu\nu'}(r)\delta\zeta(\mathbf{r}), \quad (1)$$

где $n_{\nu\nu'}(r)$ – матричные элементы электронной плотности. В соответствии с упомянутым подходом в кинетическом уравнении принимается во внимание обращение в нуль интеграла столкновений $J_{\nu\nu'}[\delta\rho^L]$ в локально равновесном состоянии. В результате уравнение для неравновесной добавки $\delta\rho_{\nu\nu'} = \delta\rho_{\nu\nu'}^L + \delta\rho'_{\nu\nu'}$ имеет вид

$$(1/i\hbar)(\varepsilon_\nu - \varepsilon_{\nu'}) (\delta\rho_{\nu\nu'}^L + \delta\rho'_{\nu\nu'}) = J_{\nu\nu'}[\delta\rho]. \quad (2)$$

Оно служит для расчета столкновительной части $\delta\rho'_{\nu\nu'}$. Только после выделения вклада локального равновесия следует переходить к пределу однородного градиента электрохимического потенциала (напряженности электрического поля), считая масштаб его изменения большим по сравнению с квантовыми масштабами изменения электронной плотности и с длиной свободного пробега электрона. Рассмотрим локально равновесную плотность тока \mathbf{j}^L , получаемую усреднением с $\delta\rho_{\nu\nu'}^L$, в изучаемой нами спонтанно поляризованной изотропной электронной системе в магнитном поле, обеспечивающем полное насыщение спонтанной намагниченности M_0 . Предполагается выявить недиссипативный термодинамический механизм аномального эффекта Холла, действующий в упомянутых условиях. Другие механизмы, связанные со столкновительным током и спин-орбитальным взаимодействием, мы считаем дающими аддитивные и в данных условиях сравнительно малые вклады. В

соответствии с этим столкновительную часть холловской проводимости σ_H , происходящую от усреднения с $\delta\rho'_{\nu\nu'}$, для качественного рассмотрения учтем в простейшей модели постоянных времени релаксации τ и циклотронной частоты Ω , полагая

$$\sigma_H = \sigma_H^L - \sigma_{H0} [1 + (\Omega\tau)^2]^{-1} \approx \sigma_H^L - \sigma_{H0} + \sigma_{H0} (\Omega\tau)^2, \quad (3)$$

где $|\sigma_{H0}| = \sigma_0 / (\Omega\tau)$, σ_0 – проводимость без магнитного поля, σ_H^L – локально равновесная холловская проводимость, определяемая плотностью тока проводимости \mathbf{j}_c^L в локальном равновесии. Второе выражение (3) записано при условии $\Omega\tau \ll 1$, отвечающем интервалу комнатных температур. Разность $\sigma_H^a = \sigma_H^L - \sigma_{H0}$ представляет собой не зависящую от напряженности магнитного поля термодинамическую часть холловской проводимости, содержащую, как будет показано ниже, вклад спиновой поляризации. Обычно основу для описания аномалии холловской проводимости составляют учет спин-орбитального взаимодействия и более точное, чем в простейшей модели, определение асимптотики при малых $\Omega\tau$. При этом величина σ_H^a фактически полагается равной нулю, поскольку σ_H^L отождествляется с σ_{H0} . Согласно изложенным выше соображениям для исследуемой нами системы актуален термодинамический вклад, который содержится в σ_H^L . Локальное равновесное состояние характеризуется плотностью соответствующего термодинамического потенциала в переменных ζ , T , \mathbf{H} , роль которого играет давление с обратным знаком как естественная функция упомянутых переменных. Неоднородность давления обусловлена введенной выше добавкой $\delta\zeta(\mathbf{r})$ к химическому потенциалу. Соответствующий градиент давления приводит к возникновению локально равновесного тока, уравновешивая силу $(1/c)[\mathbf{j}_c^L \times \mathbf{H}]$, действующую на систему с этим током. Таким образом, условие равновесия недиссипативных термодинамических сил, $\text{grad} P = (1/c)[\mathbf{j}_c^L \times \mathbf{H}]$, определяет локально равновесную плотность тока проводимости:

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_c^L &= -(c/H)[\text{grad} P \times \mathbf{h}] = -(c/H)\text{rot} P\mathbf{h} = \\ &= -(c/H)(\partial P / \partial \zeta)[\text{grad} \delta\zeta(\mathbf{r}) \times \mathbf{h}], \end{aligned} \quad (4)$$

где $\mathbf{h} = \mathbf{H}/H$. Полная плотность тока \mathbf{j}^L в локально равновесном состоянии при этом состоит из вкладов тока проводимости (4) и тока намагниченности:

$$\mathbf{j}^L = c \text{rot} \mathbf{M} + \mathbf{j}_c^L. \quad (5)$$

Величина \mathbf{j}^L вычисляется как среднее значение оператора плотности тока электрона с матрицей плотности (1). Получающаяся формула детально обсуж-

дается в [6], выведена из формулы Кубо в [7] и имеет следующий простой вид:

$$\mathbf{j}^L = c \text{rot} m\mathbf{h}, \quad (6)$$

где $m\mathbf{h}$ – среднее значение магнитного момента электрона $(-\partial\varepsilon_\nu / \partial \mathbf{H})$ в состоянии с квантовыми числами ν . Нетрудно понять, что эта формула является достаточно общей. Она применима как в условиях проявления орбитального квантования, так и без него, а также и при осуществлении спонтанной спиновой поляризации, которая отражается в соответствующем усреднении. Если квантовые эффекты и намагниченность не играют роли, то \mathbf{j}^L совпадает с \mathbf{j}_c^L и, соответственно, $\sigma_H^a = 0$. В рассматриваемых нами условиях из равенств (4)–(6) получается выражение для намагниченности:

$$\mathbf{M} = m\mathbf{h} + (1/H)P\mathbf{h}, \quad (7)$$

широко используемое при изучении эффекта де Газа-ван Альфена и диамагнетизма Ландау. Важно, что оно получено здесь чисто термодинамическим путем, способом, предложенным П.С. Зыряновым в [6]. Другие известные способы привязаны к конкретному заданию квантовых состояний электронов, т.е. к определенным моделям. Для применения (7) к системе со спонтанной спиновой поляризацией следует подставить в него соответствующее выражение для давления P , которое известно из теории термодинамического потенциала таких систем и имеет вид $P = P_0 + M_0 H$, где P_0 – четная функция намагниченности M_0 и напряженности поля H , вид которой задается статистическим описанием состояний системы. Получающаяся формула

$$\mathbf{M} = M_0 \mathbf{h} + m\mathbf{h} + (1/H)P_0 \mathbf{h} \quad (8)$$

правильно описывает разделение намагниченности на не зависящую от напряженности поля спонтанную часть и слагаемые, пропорциональные напряженности поля. На основе вышеизложенного согласно формуле (4) можно записать следующую итоговую формулу для плотности тока проводимости:

$$\mathbf{j}_c^L = -c[(n_c/H) + (\partial M_0 / \partial \zeta)][\text{grad} \delta\zeta(\mathbf{r}) \times \mathbf{h}], \quad (9)$$

где $n_c = (\partial P_0 / \partial \zeta)$ – концентрация проводящих электронов. Эта формула определяет локально равновесную холловскую проводимость, состоящую из σ_{H0} и дополнительного слагаемого, которое пропорционально $\partial M_0 / \partial \zeta$, не зависит от напряженности магнитного поля и описывает тем самым аномалию эффекта

Холла. В итоге получена аномальная часть проводимости:

$$\sigma_{\text{H}}^{\alpha} = \sigma_{\text{H}0}(H/n_c)(\partial M_0/\partial \zeta) \equiv \sigma_{\text{H}0}(H/H_a), \quad (10)$$

которую можно характеризовать параметром H_a , используя для оценок и величину H_{τ} , введенную равенством $|\sigma_{\text{H}0}|H \equiv \sigma_0 H_{\tau}$. В качественном отношении характер проявления аномального вклада $\sigma_{\text{H}}^{\alpha}$ в холловском сопротивлении ρ_{H} зависит от соотношения величин H_a и H_{τ} . Условия экспериментов в основном отвечают выполнению неравенства $H_{\tau} < H_a$, в рамках которого получается следующая упрощенная формула:

$$\rho_{\text{H}} = (n_c e c)/(H_a \sigma_0^2) + H/(n_c e c). \quad (11)$$

Она описывает приведенные выше зависимости, наблюдавшиеся в сильном поле. На основе полученных данных, принимая $\rho_0 = |(n_c e c)/(H_a \sigma_0^2)|$, можно определить экспериментальные значения параметра H_a , которые близки к 1 Э. Теоретическое рассмотрение производной по ζ спонтанной намагниченности проводящей компоненты гибридных состояний донорных электронов примесей железа в селениде ртути легко выполнить на основе результатов работы [4] и предыдущих работ по теории эффектов гибридизации. Вычисление параметра H_a в рамках принятых модельных аппроксимаций применительно к интервалу температур выше интервала гибридизации приводит к выражению $H_a = 4\pi M_c/A_{ci}$, где $M_c = \mu_{\text{B}} n_c$, $A_{ci} = \psi_{ci}/\psi_i$ – отношение параметров, характеризующих, соответственно, межэлектронное обменное взаимодействие между проводящей и локализованной компонентами (ψ_{ci}) и между локализованными компонентами (ψ_i). Поскольку величина M_c в исследуемых объектах составляет порядка 0.1 Э, при разумных оценках параметра A_{ci} теоретичес-

кие предсказания по порядку величины согласуются с экспериментальными данными. Более полного согласия на количественном уровне можно достичь, если использовать более громоздкую, чем (11), формулу, не предполагающую малости H_{τ} по сравнению с H_a . Однако такого рода уточнение вряд ли имеет смысл в силу грубо приближенного описания столкновительной проводимости. В то же время нужно отметить, что в аномальном холловском сопротивлении наблюдалась спадающая концентрационная зависимость, которая описывается полученной формулой. Таким образом, в целом можно утверждать, что нами обнаружен аномальный эффект Холла, обусловленный спонтанной спиновой поляризацией электронных гибридных состояний, и дана его теоретическая интерпретация.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (гранты # 12-02-00530, 11-02-90410укр) и программы ОФН РАН # 12-Т-2-1016.

1. В. И. Окулов, А. В. Королев, А. Т. Лончаков и др., ФНТ **31**, 1143 (2005); **33**, 282 (2007).
2. В. И. Окулов, А. Т. Лончаков, Т. Е. Говоркова и др., ФНТ **37**, 281 (2011).
3. В. И. Окулов, В. В. Гудков, И. В. Жевстовских и др., ФНТ **37**, 443 (2011).
4. В. И. Окулов, Е. А. Памятных, В. П. Силин, ФНТ **37**, 1001 (2011).
5. В. Ю. Ирхин, Ю. П. Ирхин, *Электронная структура, физические свойства и корреляционные эффекты в d- и f-металлах и их соединениях*, М.-Ижевск: НИЦ “Регулярная и хаотическая динамика”, 2008.
6. П. С. Зырянов, М. И. Клиnger, *Квантовая теория явлений электронного переноса в кристаллических полупроводниках*, М.: Наука, 1976.
7. П. С. Зырянов, В. И. Окулов, ФТТ **7**, 1749, (1965).