

НИЗКОТЕМПЕРАТУРНЫЕ АНОМАЛИИ КОЭФФИЦИЕНТА ХОЛЛА FeSi

*Н.Е.Случанко, В.В.Глушков, С.В.Демишев, М.В.Кондрин, К.М.Петухов,
А.А.Пронин, Н.А.Самарин, И.Брунсерраде¹⁾, В.В.Моцалков¹⁾,
А.А.Меновски^{*1)}*

Институт общей физики РАН, 117942 Москва, Россия

⁺*Laboratory voor Vaste-Stoffysica en Magnetisme, K.U.Leuven
B-3001 Leuven, Belgium*

^{*}*Van der Waals-Zeeman Laboratory, University of Amsterdam
1018 XE Amsterdam, The Netherlands*

Поступила в редакцию 26 октября 1998 г.

На монокристаллических образцах высокого качества "Кондо-изолятора" – моносилицида железа детально исследована температурная зависимость коэффициента Холла в интервале 1.8 ÷ 300 К. Установлено, что параметр $R_H(T, H = 12.5 \text{ кЭ})$ претерпевает двойную инверсию знака в используемом интервале температур, причем при температурах ниже $T_m \approx 7 \text{ К}$ на угловых и полевых зависимостях холловского напряжения появляется аномальная (магнитная) составляющая. Результаты экспериментальных исследований $R_H(T, H_0)$ в FeSi обсуждаются в рамках фазовой диаграммы в модели экситонного диэлектрика.

PACS: 71.28.+d

1. В последнее время в число соединений, объединяемых термином "Кондо-изоляторы", принято включать и моносилицид железа [1, 2]. Однако многообразие теоретических подходов, привлекаемых в этом случае различными авторами [1–5], и отсутствие единой общепринятой модели, пригодной для описания FeSi, оставляет открытым вопрос о природе основного состояния и особенностях поведения физических параметров в этом материале.

Среди проблем, связанных с исследованиями FeSi, следует особо отметить отсутствие надежных и достоверных экспериментальных данных о поведении коэффициента Холла $R_H(H, T)$ в этом узкозонном ($E_g \approx 60 \text{ мэВ}$ [6]) почти магнитном полупроводнике. При этом выполненные сравнительно недавно измерения $R_H(H, T)$ [7, 8] относятся к существенно различающимся температурным интервалам ($T \leq 55 \text{ К}$ [7] и $T \geq 20 \text{ К}$ [8]) и не согласуются даже по знаку коэффициента Холла. В то же время, именно получение достоверных данных $R_H(T, H)$ при сопоставлении с результатами измерений коэффициента термоэдс и сопротивления узкозонного полупроводника позволяют рассчитывать на выяснение структуры и характера "примесных" состояний в щели и механизмов рассеяния носителей заряда в FeSi.

В связи с этим целью данного исследования является получение детальной информации о характеристиках носителей заряда в области собственной и "примесной" проводимости в FeSi на основании измерений коэффициентов Холла, термоэдс и сопротивления в интервале температур 1.8 ÷ 300 К. Поскольку в [8] отмечено появление гистерезиса на полевых зависимостях холловского напряжения в FeSi в области сверхнизких температур, особый интерес для выяснения характера основного состо-

¹⁾ Y. Bruynseraede, V.V. Moshchalkov, A.A. Menovskiy.

Важнейшим направлением в данном исследовании является изучение особенностей поведения $R_H(T, H)$ при гелиевых температурах. Методика термоэлектрических измерений аналогична обсуждавшейся в [9]. При исследовании $R_H(H_0, T)$ в дополнение к обычной технике [10] нами использовался автоматизированный модуль управления вращением образца в магнитном поле и прецизионный температурный контроллер оригинальной конструкции. Измерения проводились на монокристаллических образцах высокого качества ($\rho(1.8\text{ К})/\rho(300\text{ К}) \geq 10^5$).

2. На рис.1 представлены экспериментальные данные исследований коэффициента Холла $R_H(T)$ в магнитном поле $H = 12.5\text{ кЭ}$ (кривая 1) и коэффициента термоэдс $S(T)$ (кривая 2) в интервале температур $1.8 \div 300\text{ К}$. Как следует из результатов рис.1, для FeSi нами обнаружена двойная инверсия знака коэффициента Холла с понижением температуры от комнатной при $T_{inv1}^H \approx 75\text{ К}$ и $T_{inv2}^H \approx 12.5\text{ К}$. Наличие двух линейных в координатах $\ln R_H = f(1/T)$ активационных участков на зависимости $R_H(T)$ в интервалах температур $80 \div 300\text{ К}$ (I) и $15 \div 60\text{ К}$ (II) (рис.2) позволяет определить параметры $T_{a1}^H \approx 345\text{ К}$ и $T_{a2}^H \approx 68\text{ К}$. В интервале температур $T < T_{inv2}^H \approx 12.5\text{ К}$ наблюдается резкий рост абсолютной величины коэффициента Холла (рис.1), причем с понижением температуры в окрестности $T \leq T_m \approx 7\text{ К}$ (область III) появляется аномальный вклад в $R_H(T, H)$, сопровождающийся возникновением гистерезиса на полевых и угловых зависимостях холловского напряжения.

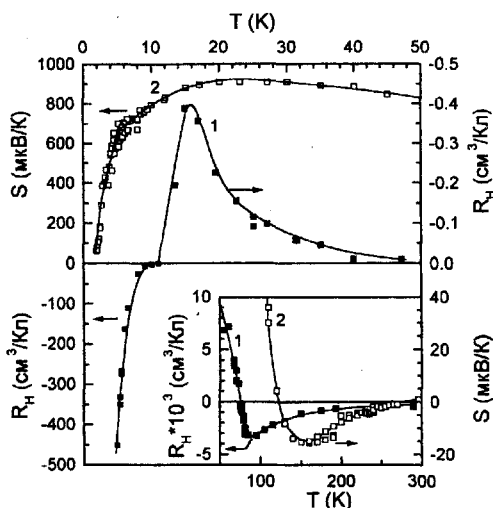


Рис.1. Температурные зависимости коэффициентов Холла R_H (1) и термоэдс S (2) монокристалла FeSi

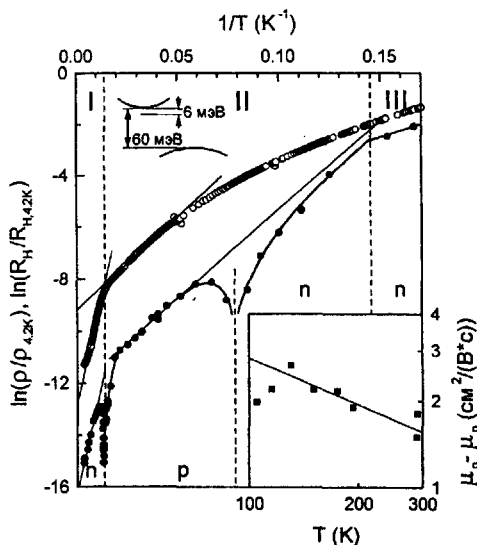


Рис.2. Активационные асимптотики температурных зависимостей удельного сопротивления ρ (○) и коэффициента Холла R_H ($H = 12.5\text{ кЭ}$) (●) моносилцида железа. Знак R_H определяется указанным типом носителей заряда (p или n). На вставке представлена температурная зависимость разности подвижностей электронов и дырок в области собственной проводимости FeSi (аппроксимация линейной зависимостью соответствует закону $T^{-1/2}$)

Поведение коэффициента термоэдс $S(T)$ в $FeSi$ (кривая 2 на рис.1) аналогично измерявшемуся в [7, 11] и в целом подобно зависимости $R_H(T)$. В интервале температур $150 \div 300$ К перестроение экспериментальных данных в координатах $S = f(1/T)$ позволяет получить значение параметра $T_{a1}^S \approx 70$ К. Подчеркнем, что низкотемпературный максимум $S(T)$ положительной полярности амплитудой более 900 мкВ/К (см. рис.1, кривая 2), следуя аргументам [7], необходимо связать с эффектом фоновнного увлечения в $FeSi$. По-видимому, возникновение дополнительного вклада в $S(T)$ в этом интервале температур не только существенно сдвигает точку инверсии $T_{inv1}^S \approx 123$ К $>$ T_{inv1}^H , но и затрудняет непосредственное определение активационных параметров T_{a2}^S и E_{a2}^S из зависимости $S(T)$. Вслед за [7] отметим также существование инверсии знака $S(T)$ в окрестности комнатной температуры. Другой особенностью поведения $S(T)$ в $FeSi$ обнаруженной в данном исследовании, является возникновение излома на температурной зависимости термоэдс в окрестности $T_m \approx 7$ К (см. рис.3с).

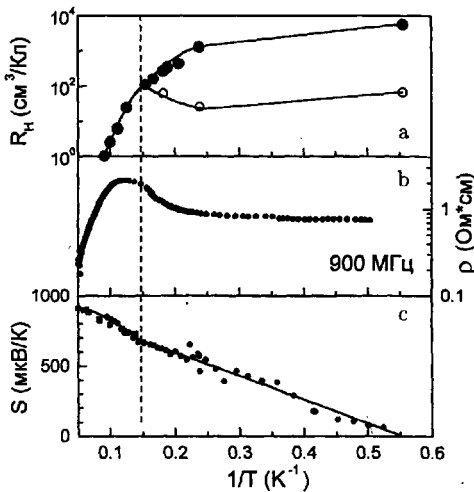


Рис.3 Низкотемпературные зависимости а) аномального (●) и нормального (□) коэффициентов Холла R_H , б) динамического сопротивления ρ на частоте 900 МГц и в) коэффициента термоэдс S моносилицида железа в окрестности T_m

Для получения дополнительной информации, необходимой при анализе температурных зависимостей коэффициентов Холла и термоэдс (рис.1, кривые 1 и 2), в работе были проведены также измерения сопротивления на постоянном токе (кривая 2 на рис.2) и СВЧ проводимости (см. рис.3б) в интервале температур $1.8 \div 300$ К. Температурная зависимость $\rho(T)$ в целом согласуется с результатами [7–8, 11]. Как и в случае $R_H(T)$, на кривой $\rho(T)$ имеются два активационных участка изменения сопротивления, практически совпадающих с интервалами активационного поведения коэффициента Холла (рис.2). Значения параметров T_{a1}^{ρ} и T_{a2}^{ρ} составляют соответственно 336 К и 71 К, что в пределах экспериментальной погрешности соответствует значениям T_{a1} и T_{a2} , определенным из холловских данных. В отличие от сопротивления на постоянном токе, представляющего собой монотонно меняющуюся функцию температуры, на температурной зависимости СВЧ сопротивления нами обнаружена особенность в виде максимума в окрестности $T_m \approx 7$ К (рис.3б), отвечающей температуре появления аномальной (магнитной) составляющей холловского напряжения и излома на зависимости $S(T)$.

3. а. Область собственной проводимости $T \geq 70$ К (I). По-видимому, согласованное изменение параметров $\rho(T)$ и $R_H(T)$ в этом интервале температур (рис.2) следует отнести за счет активационного уменьшения с температурой концентрации собственных носителей заряда. Величина щели, оцененная из данных рис.2, составляет $E_g = 2T_{a1} \approx 60$ мэВ и согласуется с результатами [6–8], а также со значением E_g , полученным из расчетов электронной структуры FeSi [12–14]. Воспользовавшись выражением для термоэдс полупроводника в области собственной проводимости –

$$S = \frac{k_B}{e} \left\{ \frac{b-1}{b+1} \frac{E_g}{2k_B T} + \frac{3}{4} \ln \frac{m_n}{m_p} \right\},$$

где $b = \mu_n/\mu_p$; μ_n , m_n , μ_p , m_p – подвижности и эффективные массы электронов и дырок, соответственно, k_B – постоянная Больцмана, e – заряд электрона, получим оценку величины $b = \mu_n/\mu_p = 1.51$. Далее, для оценки в области собственной проводимости характера изменения с температурой разности подвижностей носителей используем простейшее соотношение $\mu_n - \mu_p = R_H/\rho = AT^{-\alpha}$ и экспериментальные данные рис.2. Найденное таким образом (см. вставку на рис.2) значение показателя степени $\alpha \approx 0.5$, в сочетании с достаточно низкими значениями μ_n , $\mu_p \approx 4 \div 6$ см²/В·с, на наш взгляд, может быть связано с рассеянием носителей на локальных флуктуациях спиновой плотности [3, 4], приводящих к возрастанию модуля термически индуцированных магнитных моментов в FeSi в интервале температур $T \geq 100$ К. Альтернативное объяснение столь низкой подвижности носителей заряда может быть получено в рамках модели [5] зарядовых флуктуаций $3d^6\text{Fe}^{2+} \rightarrow 3d^7\text{Fe}^{1+}$ в FeSi.

б. Область "примесной" проводимости $15 \div 60$ К (II). При столь малых и достаточно близких значениях подвижностей в электронной и дырочной подсистемах появление дополнительного канала рассеяния преимущественно для одного типа носителей заряда – электронов должно приводить к изменению соотношения $b = \mu_n/\mu_p$ и инверсии знака параметров $R_H(T)$ и $S(T)$. При этом возникновение дополнительного уровня в щели с $E_{ex} \approx 6$ мэВ (см. также вставку на рис.2), на наш взгляд, может быть связано с появлением в спектре квазичастичных возбуждений в окрестности дна зоны проводимости особенности, отвечающей экситонным состояниям. Следует подчеркнуть возможную аналогию с другим "Кондо-изолятором" SmB₆, в котором, как нам представляется [15], быстрые валентные флуктуации достаточно хорошо описываются в рамках экситон-поляронной модели Кикоина – Мищенко [16]. Отметим также, что как в случае SmB₆, так и для FeSi наличие конгруэнтных электронно-дырочных участков поверхности Ферми (возникающих, например, вследствие $p-d$ ($d-f$) гибридизации) является фактором, благоприятствующим описанию этих узкозонных полупроводников в рамках модели экситонного диэлектрика (ЭД) [17].

Очевидно, столь низкие значения подвижности электронов и дырок в области промежуточных температур могут свидетельствовать как о быстрой релаксации носителей заряда вследствие рассеяния на спиновых/зарядовых флуктуациях в FeSi, так и об образовании тяжелых фермионов за счет эффективной гибридизации $p-d$ -состояний в моносилициде железа. Для проверки вышеизложенного в предположении возникновения экситонных состояний в щели приведем простейшую оценку эффективной массы носителей. Используя соотношение $E_{ex} \approx m^*e^4/4\epsilon^2\hbar^2$, с учетом полученного нами значения $E_{ex} = 6$ мэВ и $\epsilon_0 = \epsilon'(\omega \rightarrow 0) \approx 200$ [18] для m^* в FeSi

имеем: $m^* \approx 34.5m_0$. Воспользовавшись значениями m^* и E_{ex} , оценим радиус локализации "примесных" состояний $a^* = \hbar/\sqrt{2m^*E_{ex}} \approx 4 \text{ \AA}$. Полученное значение параметра a^* коррелирует с результатом для SmB_6 [15] и, на наш взгляд, является дополнительным аргументом в пользу предложенной интерпретации.

в. Область температур $T \leq 7 \text{ K}$ (III). С привлечением для описания основного состояния FeSi моделей экситонного диэлектрика наличие электронного фазового превращения в окрестности $T_m \approx 7 \text{ K}$ (см. рис.3) может быть обусловлено, например, переходом в рамках фазовой диаграммы ЭД [19] в состояние с волной спиновой плотности. Проведенные нами измерения угловых и полевых зависимостей коэффициента Холла $R_H(T \leq 7 \text{ K})$ предоставляют дополнительные аргументы в пользу такого заключения, однако результаты этих исследований выходят за рамки данной работы. Отметим в заключение, что для окончательного выяснения вопроса о природе основного состояния FeSi представляется необходимым проведение низкотемпературных измерений квазиоптических и магнитооптических характеристик моносилицида железа в миллиметровой и субмиллиметровой областях спектра.

Авторы признательны А.А.Волкову, Б.П.Горшунову и М.Дресселю за полезные обсуждения. Работа выполнена в рамках гранта Российского фонда фундаментальных исследований 98-02-17163, программ Министерства науки и технологий "Фундаментальная спектроскопия", "Физика микроволн", "Фуллерены и атомные кластеры", а также при финансовой поддержке международных проектов INTAS 96-451 и INTAS 94-4435.

-
1. G.Aeppli and Z.Fisk, Comments Cond. Mat. Phys. **16**, 155 (1992).
 2. Z.Fisk, J.L.Sarrao, J.D.Thompson et al., Physica **B206-207**, 798 (1995).
 3. Т.Мория, УФН **135**, 117 (1981).
 4. П.В.Гельд, А.Г.Волков, С.В.Кортов и др., ДАН **320**, 1097 (1991).
 5. С.М.Varma, Phys. Rev. **B50**, 9952 (1994).
 6. D.Mandrus, J.L.Sarrao, A.Magliori et al., Phys. Rev. **B51**, 4763 (1995).
 7. B.C.Sales, E.C.Jones, B.C.Chakoumakos et al., Phys. Rev. **B50**, 8207 (1994).
 8. S.Paschen, E.Felder, M.A.Chernikov et al., Phys. Rev. **B56**, 12916 (1997).
 9. N.E.Sluchanko, V.V.Glushkov, S.V.Demishev et al., Phys. Rev. **B56**, 10816 (1997).
 10. N.E.Sluchanko, V.V.Glushkov, S.V.Demishev et al., Phys. Rev. **B51**, 1112 (1995).
 11. V.Buschinger, C.Geibel, F.Steglich et. al., Physica **B230-232**, 784 (1997).
 12. Л.И.Винокурова, А.В.Власов, Э.Т.Кулатов, Труды ИОФАН **32**, 26 (1991).
 13. L.Matteiss and D.Hamann, Phys. Rev. **B47**, 13114 (1993).
 14. T.Jarlborg, Phys. Rev. **B51**, 11106 (1995).
 15. Н.Е.Случанко, В.В.Глушков, С.В.Демисhev и др., ЖЭТФ **115** (1999), в печати.
 16. К.А.Kikoin and A.S.Mishchenko, J. Phys. Cond. Mat. **7**, 307 (1995).
 17. Л.В.Келдыш, Ю.В.Копаев, ФТТ **6**, 2791 (1964).
 18. A.Damascelli, K.Schulte, D. van der Marel et al., Phys. Rev. **B55**, R4863 (1997).
 19. Н.И.Куликов, В.В.Тугушев, УФН **144**, 643 (1984).