Письма в ЖЭТФ, том 100, вып. 4, с. 272 – 275

Концентрационные аномалии намагниченности кристаллов HgSe:Fe

Н. Попенко[1)], *Б. Бекиров, И. Иванченко, А. Блудов*+, *В. Пащенко*+

Институт радиофизики и электроники им. Усикова НАНУ, 61085 Харьков, Украина

+*Физико-технический институт низких температур им. Веркина НАНУ, 61103 Харьков, Украина*

Поступила в редакцию 14 июля 2014 г.

Проведено экспериментальное исследование полевых и температурных зависимостей намагниченности полумагнитного полупроводника HgSe:Fe. Зарегистрировано спиновое расщепление уровней Ландау в квантовых осцилляциях де Гааза–ван Альфена в интервале концентраций примеси железа $7 \cdot 10^{18}\,\text{см}^{-3} < N_{\text{Fe}} < 2 \cdot 10^{19}\,\text{см}^{-3}$. Из полученных зависимостей периода осцилляций от концентрации железа определена эффективная площадь экстремального сечения поверхности Ферми и проведены оценки концентрации коллективизированных электронов в условиях стабилизации уровня Ферми на донорном уровне железа. Определена критическая концентрация примеси, при которой происходит резкое возрастание температуры Кюри–Вейса, обусловленное спонтанной спиновой поляризацией системы гибридизированных электронных состояний в селениде ртути, легированном железом.

DOI: 10.7868/S0370274X14160061

Введение. В настоящий период интенсивного развития спиновой электроники особое внимание уделяется исследованиям полумагнитных полупроводников, рассматриваемых, в частности, в качестве перспективных составляющих различных гетероструктур [1, 2]. При этом принципиальным становится вопрос об использовании полупроводников с высокой подвижностью носителей тока. В связи с этим весьма перспективными представляются бесщелевые полупроводники группы $\text{A}^{\text{II}}\text{B}^{\text{VI}}$, в которых магнитным ионом служит железо. К ним относятся и кристаллы HgSe:Fe, основные результаты исследования которых обобщены и наиболее полно проанализированы в [3]. Наличие резонансного донорного уровня железа на фоне сплошного спектра зоны проводимости [4] приводит к многообразию физических свойств этих кристаллов [5, 6]. К преимуществам HgSe:Fe по сравнению, например, с твердыми растворами HgCrSe и HgCrCdSe [7, 8] следует отнести лучшую растворимость железа в HgSe ($\approx 20\,\%$), а также тот факт, что введение железа в HgSe упрочняет межатомные связи в решетке, тем самым стабилизируя ее.

В данной статье обсуждаются особенности, выявленные в полевых осцилляциях де Гааза–ван Альфена при намагничивании кристаллов HgSe:Fe с концентрацией примеси железа $2 \cdot 10^{18}\,\text{см}^{-3} \leq N_{\text{Fe}} \leq 3 \cdot 10^{19}\,\text{см}^{-3}$.

Образцы и методики. Исследуемые образцы были выращены в Черновицком национальном университете методом твердотельной рекристаллизации. Они имели форму дисков диаметром 5 мм и толщиной 0.8 мм. Измерения температурных и полевых зависимостей намагниченности кристаллов проводились на приборе СКВИД магнитометр MPMS-XL5 в интервале температур $T = (5{-}300)$ K и магнитных полей $0 \leq H \leq 5$ T.

Результаты и обсуждение. Известно, что при малых концентрациях примеси уровень Ферми находится ниже донорного уровня железа и все ионы Fe^{2+} автоионизируются ($\text{Fe}^{2+} \rightarrow \text{Fe}^{3+} + e^-$), превращаясь в ионы Fe^{3+} с отдачей электрона в зону проводимости. С ростом концентрации железа N_{Fe} уровень Ферми движется вверх, достигая донорного уровня, расположенного на расстоянии ~ 210 мэВ от дна зоны проводимости, и фиксируется на нем при $N_{\text{Fe}} \approx 4.5 \cdot 10^{18}\,\text{см}^{-3}$ [3]. Дальнейшее увеличение содержания железа не изменяет концентрации электронов, приводя к существованию двух зарядовых состояний ионов железа, Fe^{3+} и Fe^{2+}. Таким образом, возникает система со смешанной валентностью.

Результаты проведенных нами измерений намагниченности кристаллов показали, что диамагнитная составляющая полупроводника HgSe уменьшается при увеличении магнитного поля (рис. 1). Пунктирной линией на рисунке приведена полученная в эксперименте полевая зависимость магнитного сигнала, связанного только с диамагнитной составляющей исходной матрицы HgSe при темпера-

1)e-mail: buran@ire.kharkov.ua

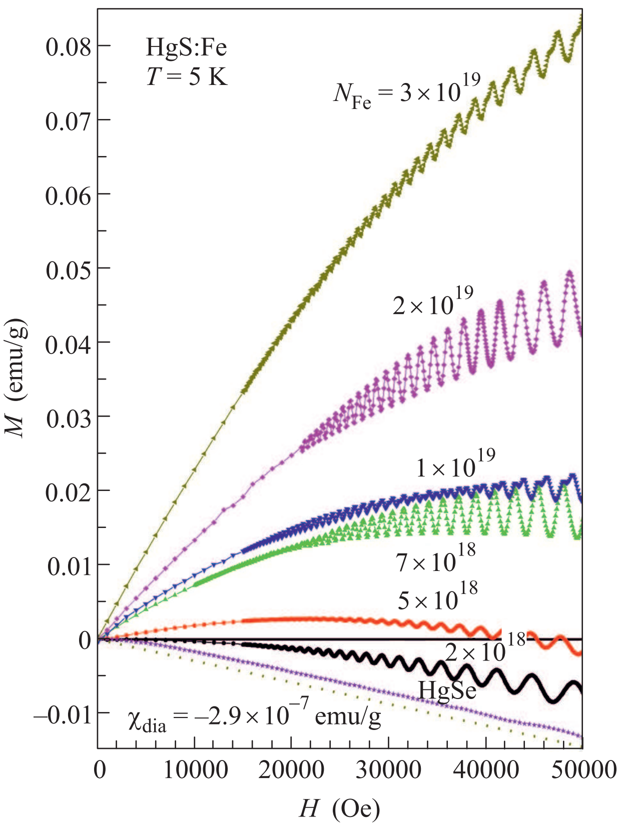

Рис. 1. Полевые зависимости намагниченности $M(H)$ кристаллов HgSe:Fe с различными концентрациями железа и селенида ртути HgSe при температуре $T = 5$ K

туре $T = 5$ K ($\chi_{\text{dia}} = -2.9 \cdot 10^{-7}$ см$^{-3}$/г). Ее величина в точности соответствует оценкам диамагнитного вклада с использованием таблиц Паскаля [9].

В кристаллах HgSe:Fe намагниченность определяется двумя составляющими: парамагнитной, зависящей от температуры и магнитного поля, и не зависящей от температуры диамагнитной. Характер поведения полученных экспериментальных зависимостей $M(H)$ для малых концентраций примеси железа ($N_{\text{Fe}} \leq 5 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$, т.е. до начала стабилизации уровня Ферми на донорном уровне железа) указывает на соизмеримость диамагнитного и парамагнитного вкладов в общую намагниченность, которая в итоге определяется взаимным соотношением их величин [10]. В этом случае смена доминирующего вклада той или иной составляющей при увеличении внешнего магнитного поля и обусловливает экстремальный вид полученных кривых намагничивания (рис. 1). Как видно из графиков, в кристаллах HgSe:Fe с большими концентрациями примеси железа парамагнетизм доминирует во всем диапазоне магнитных полей. При этом в магнитных полях $H \geq 15$ кЭ для всех исследуемых образцов наблюдаются осцилляции намагниченности (эффект де Гааза-ван Альфена).

При анализе полевых зависимостей намагниченности $M(H)$ кристаллов HgSe:Fe с различной концентрацией примеси железа (рис. 1) обращает на себя внимание обнаруженная особенность в поведении квантовых осцилляций для образца с $N_{\text{Fe}} = 1 \times \times 10^{19}$ см$^{-3}$ – наличие дуплетной структуры осцилляционных пиков, обусловленной спиновым расщеплением уровней Ландау. Указанную особенность можно объяснить в рамках модели гибридизированных состояний в полупроводнике HgSe:Fe [11, 12]. Суть данной физической модели состоит в том, что при определенных условиях возможен переход электронов от связанного состояния в атоме к состояниям, в которых частичная локализация электронов на примесном ионе сочетается со “свободным” движением в зоне проводимости кристалла. Это сопровождается формированием узкого пика плотности электронных состояний в окрестности уровня Ферми в интервале концентраций примеси железа $6 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$ $\leq$ $\leq N_{\text{Fe}} \leq 2 \cdot 10^{19}$ см$^{-3}$, приводит к различным аномалиям, наблюдаемым, например, в концентрационных зависимостях g-фактора электронов проводимости и температуры Дингля [13], интенсивности линии ЭПР [14] и т.д. При этом параметр спинового расщепления уровней Ландау имеет экстремум именно в области указанных выше концентраций, что и объясняет дублетную структуру осцилляционных кривых намагниченности образца с $N_{\text{Fe}} = 1 \cdot 10^{19}$ см$^{-3}$. Кроме того, наблюдается заметное “гашение” амплитуды осцилляций полевой зависимости намагниченности данного образца, что находится в соответствии с теоретической моделью [15]. Согласно указанной модели гибридизационное взаимодействие, если таковое имеет место, действует в направлении существенного подавления эффекта де Гааза–ван Альфена. Таким образом, трактовка выявленных нами особенностей в поведении полевых и температурных зависимостей намагниченности кристаллов HgSe:Fe может служить новым аргументом, свидетельствующим в пользу вышеописанных физических моделей.

Из полученных зависимостей $M(H)$ был определен период квантовых осцилляций для всех исследованных образцов (рис. 2). Как видно из приведенного графика, с увеличением концентрации железа период осцилляций уменьшается с $1.98 \cdot 10^{-6}$ Э$^{-1}$ для $N_{\text{Fe}} = 2 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$ до $1.22 \cdot 10^{-6}$ Э$^{-1}$ для $N_{\text{Fe}} = = 7 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$ и для остальных образцов с большей концентрацией примеси остается неизменным в пределах погрешности измерений. Полученный резуль-

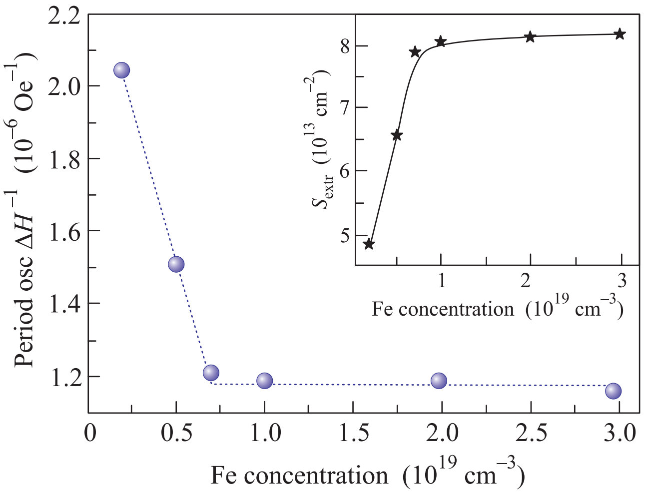

Рис. 2. Концентрационная зависимость периода осцилляций де Гааза–ван Альфена, наблюдаемых при $T = 5$ K. На вставке приведена концентрационная зависимость площади экстремального сечения Ферми

тат находится в согласии с известными данными о фиксации уровня Ферми на примесном уровне железа и последующей стабилизации концентрации зонных электронов с увеличением концентрации примеси [3].

Найденные периоды квантовых осцилляций в исследованных образцах позволяют определить площади экстремальных сечений $S_{\rm extr}$ поверхности Ферми, нормальных к направлению магнитного поля, по известному соотношению Лифшица–Онсагера [16]:

$$S_{\rm extr} = \frac{2\pi\hbar e}{c\Delta H^{-1}} \tag{1}$$

(где e – заряд электрона, $\hbar$ – постоянная Планка, c – скорость света в вакууме), а также оценить концентрацию коллективизированных электронов n_s в исследуемых кристаллах:

$$n_s = \frac{e}{\pi\hbar\Delta H^{-1}}. \tag{2}$$

На вставке к рис. 2 приведена концентрационная зависимость площади экстремального сечения поверхности Ферми. Как видно из графика, увеличение содержания примеси железа в селениде ртути в исследуемых образцах приводит к изменению площади экстремального сечения от $4.84 \cdot 10^{13}$ до $8.19 \cdot 10^{13}$ см$^{-2}$. Следует отметить, что для образцов с концентрацией примеси железа $2 \cdot 10^{18}$ см$^{-3} \le N_{\rm Fe} \le$ $\le 7 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$ наблюдается резкое изменение площади экстремальных сечений от $S_{\rm extr} = 4.84 \cdot 10^{13}$ до $7.89 \cdot 10^{13}$ см$^{-2}$, которая остается практически неизменной для больших концентраций примеси. При этом концентрация коллективизированных электронов возрастает с увеличением концентрации железа по аналогичному закону, изменяясь в пределах $2.27 \cdot 10^{18}$ см$^{-3} \le n_s \le 3.85 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$. Полученные зависимости позволяют утверждать, что в исследованных кристаллах HgSe:Fe уровень Ферми "захватывается" донорными состояниями при концентрациях железа $N_{\rm Fe} \approx 7 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$, а концентрация зонных электронов в условиях стабилизации уровня Ферми составляет $n_s \approx 3.85 \cdot 10^{18}$ см$^{-3}$.

Нами были проанализированы температурные зависимости магнитной восприимчивости $\chi(T)$ кристаллов HgSe:Fe для всех концентраций железа в температурном интервале 5–300 K в магнитных поле $H = 1$ кЭ. Характерный вид такой зависимости для образца с $N_{\rm Fe} = 3 \cdot 10^{19}$ см$^{-3}$ показан на вставке к рис. 3. Для анализа $\chi(T)$ в температурном интервале 5–300 K мы использовали простейшую модель Кюри–Вейса с учетом заметного температурно-независимого вклада:

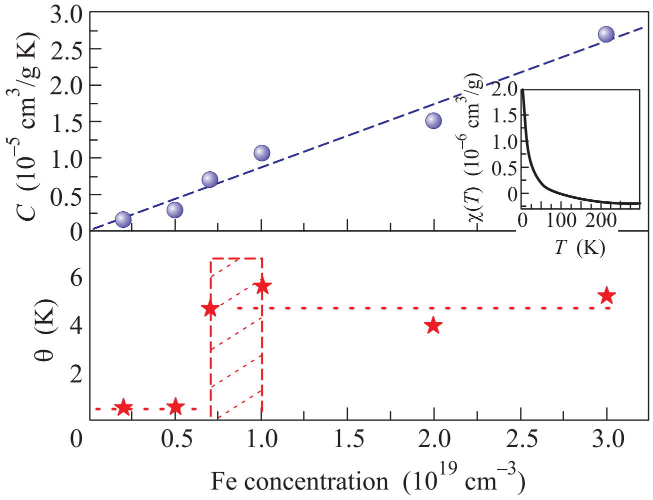

Рис. 3. Концентрационные зависимости константы Кюри C (сверху) и температуры Кюри–Вейса (внизу). На вставке приведена зависимость $\chi(T)$ для образца с $N_{\rm Fe} = 3 \cdot 10^{19}$ см$^{-3}$

$$\chi(T) = \chi_0 + \frac{C}{T+\theta}, \tag{3}$$

где C – константа Кюри, θ – температура Кюри–Вейса парамагнитной системы ионов железа ($S = 5/2$), χ_0 – независящий от температуры магнитный вклад.

Эффективные магнитные параметры, такие, как C и температура Кюри–Вейса θ, определялись в соответствии с (3) из измеренных температурных зависимостей магнитной восприимчивости кристаллов

HgSe:Fe ($T = (5{-}300)$ K) (рис. 3). Следует отметить, что поскольку величина С прямо пропорциональна общему количеству парамагнитных центров в конкретном образце, для группы исследуемых образцов HgSe:Fe наблюдается ожидаемый линейный рост C по мере увеличения числа атомов железа в образце.

На концентрационной зависимости температуры Кюри–Вейса можно выделить три характерные области. В области, соответствующей малым концентрациям железа ($N_{\text{Fe}} < 7 \cdot 10^{18}\,\text{см}^{-3}$), полученная из описания экспериментальных кривых величина θ постоянна в пределах погрешности измерений и близка к нулю. Это свидетельствует об очень слабых эффективных взаимодействиях (или даже об их отсутствии). В области, соответствующей интервалу концентраций железа $7 \cdot 10^{18}\,\text{см}^{-3} \le N_{\text{Fe}} \le 1 \cdot 10^{19}\,\text{см}^{-3}$, температура Кюри–Вейса резко возрастает по абсолютной величине до значений $\theta = 4 \pm 0.5$ K, что свидетельствует о возникновении антиферромагнитного обмена между магнитными центрами железа. В области, соответствующей концентрациям железа $N_{\text{Fe}} > 1 \cdot 10^{19}\,\text{см}^{-3}$, температура Кюри–Вейса остается неизменной в пределах ошибки ее определения. Обнаруженное аномальное изменение температуры Кюри–Вейса может служить экспериментальным подтверждением теоретической модели, описывающей возникновение спонтанной спиновой поляризации системы гибридизированных электронных состояний на донорных примесях низкой концентрации в полосе проводимости данного класса кристаллов [17].

Заключение. Итак, нами проведены исследования полевых и температурных зависимостей намагниченности полумагнитного полупроводника HgSe:Fe с концентрацией железа $2 \cdot 10^{18}\,\text{см}^{-3} \le N_{\text{Fe}} \le 3 \cdot 10^{19}\,\text{см}^{-3}$. Установлено, что при гелиевых температурах в магнитных полях $H \ge 15$ кЭ для всех образцов наблюдаются квантовые осцилляции намагниченности, амплитуда которых монотонно уменьшается по мере повышения температуры до $T = 25$ K вследствие теплового размытия уровня Ферми.

Впервые зарегистрировано спиновое расщепление уровней Ландау в квантовых осцилляциях де Гааза–ван Альфена в интервале концентраций примеси железа $7 \cdot 10^{18}\,\text{см}^{-3} < N_{\text{Fe}} < 2 \cdot 10^{19}\,\text{см}^{-3}$. Определена критическая концентрация примеси, при которой происходит резкое возрастание температуры Кюри–Вейса, обусловленное спонтанной спиновой поляризацией системы гибридизированных электронных состояний в селениде ртути, легированном железом. Построены зависимости эффективной площади экстремальных сечений поверхности Ферми и концентрации коллективизированных электронов от концентрации примеси. Это позволило определить значения указанных величин в условиях стабилизации уровня Ферми на резонансном донорном уровне железа.

1. S. Kuroda, N. Nishizawa, K. Takita, M. Mitome, Y. Bando, K. Osuch, and T. Dietl, Nature Mater. **6**, 440 (2007).
2. X. Y. Cui, J. E. Medvedeva, B. Delley, A. G. Freeman, N. Newman, and C. Stampfl, Phys. Rev. Lett. **95**, 256404 (2005).
3. И. М. Цидильковский, УФН **162**, 63 (1992).
4. A. Mycielski, P. Dzwonkowski, B. Kowalski, M. Orlowski, M. Dobrowolska, M. Arciszewska, W. Dobrowolski, and J. M. Baranowski, J. Phys. C: Sol. Stat. Phys. **19**, 3605 (1986).
5. J. Mycielski, Sol. State Commun. **60**, 165 (1986).
6. В. И. Окулов, Г. Е. Говоркова, В. В. Гудков, И. В. Жевстовских, А. В. Королев, А. Т. Лончаков, К. А. Окулова, Е. А. Памятных, С. Ю Паранчич, ФНТ **33**, 282 (2007).
7. K. Lamonova, I. Ivanchenko, S. Orel, S. Paranchich, V. Tkach, E. Zhitlukhina, N. Popenko, and Yu. Pashkevich, J. Phys.: Condens. Matter. **21**, 045603 (2009).
8. B. Bekirov, I. Ivanchenko, N. Popenko, and V. Tkach, Funct. Mat. **19**, 319 (2012).
9. R. Boca, *Theoretical Foundations of Molecular Magnetism (Current Methods in Inorganic Chemistry)*, Elsevier (1999).
10. С. В. Вонсовский, Я. С. Шур, *Ферромагнетизм*, ОГИЗ, М.-Л. (1948).
11. В. И. Окулов, Л. Д. Сабирзянова, Э. З. Курмаев, Л. Д. Финкельштейн, Р. Ф. Каримов, А. Мувес, С. Ю. Паранчич, Письма в ЖЭТФ **81**, 80 (2005).
12. В. И. Окулов, Е. А. Памятных, Г. А. Альшанский, ФНТ **35**, 194 (2009).
13. Г. А. Альшанский, Т. Е. Говоркова, В. И. Окулов, А. В. Королев, С. Ю. Паранчич, ФНТ **34**, 613 (2008).
14. Z. Wilamowski, W. Jantsch, and G. Hendorfer, Semicond. Sci. and Technol. **5**, 266 (1990).
15. В. В. Вальков, Д. М. Дзебисашвили, ЖЭТФ **111**, 654 (1997).
16. Г. С. Кринчик, *Физика магнитных явлений*, Изд-во МГУ, М. (1976).
17. В. И. Окулов, Е. А. Памятных, В. П. Силин, ФНТ **37**, 1001 (2011).