

# НИЗКОТЕМПЕРАТУРНОЕ ИЗМЕНЕНИЕ МАГНИТНОГО УПОРЯДОЧЕНИЯ В НЕМАГНИТНОМ ПОЛУПРОВОДНИКЕ *n*-Ge:As ВБЛИЗИ ФАЗОВОГО ПЕРЕХОДА МЕТАЛЛ–ДИЭЛЕКТРИК

*А. И. Вейнгер*<sup>a\*</sup>, *А. Г. Забродский*<sup>a</sup>, *Т. Л. Макарова*<sup>a,b</sup>,  
*Т. В. Тиснек*<sup>a,\*\*</sup>, *С. И. Голощанов*<sup>a</sup>, *П. В. Семенухин*<sup>a</sup>

<sup>a</sup> Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе Российской академии наук  
194021, Санкт-Петербург, Россия

<sup>b</sup> Umea University, Universitetomradet  
90187, Umea, Sweden

Статья написана по материалам доклада  
на 36-м Совещании по физике низких температур  
(Санкт-Петербург, 2–6 июля 2012 г.)

Экспериментально обнаружено и изучено явление низкотемпературного перехода от антиферромагнитного к ферромагнитному упорядочению примесных спинов в немагнитном полупроводнике *n*-Ge:As вблизи фазового перехода металл–диэлектрик. Эффект проявляется в спектрах электронного парамагнитного резонанса в виде довольно резких изменений плотности спинов и *g*-фактора. По мере уменьшения относительного содержания компенсирующей примеси галлия от 0.7 температура перехода уменьшается и при компенсациях меньше 0.3 опускается ниже рабочего интервала температур (ниже 2 К).

DOI: 10.7868/S0044451013050133

## 1. ВВЕДЕНИЕ

В классических немагнитных полупроводниках Ge и Si вблизи фазового перехода металл–диэлектрик наблюдается антиферромагнитное [1, 2] либо ферромагнитное упорядочение [3, 4] спинов мелких примесных центров. Такое упорядочение является следствием обменного взаимодействия примесей при высокой их концентрации. В настоящей работе при понижении температуры впервые был обнаружен и исследован переход от антиферромагнитного к ферромагнитному упорядочению при изменении плотности спинов, температуры образцов и величины компенсации. Изучалась немагнитная система Ge:As с начальной концентрацией  $n = 3.6 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ , в которой магнитные свойства определялись примесью мышьяка. В нее дозированно вводилась компенсирующая примесь галлия путем трансмутационно-

го нейтронного легирования. Исследования проводились с помощью техники электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) в температурном интервале  $2 \text{ К} < T < 100 \text{ К}$ .

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Интеграл от линии поглощения ЭПР, как известно [5], пропорционален той части магнитной восприимчивости, которая определяется парамагнитными центрами As. Методика интегрирования для подобного случая описана в работе [1]. Температурные зависимости указанного интеграла отражают поведение магнитной восприимчивости  $\chi$ :

$$\chi = n_s \mu_B^2 p_{eff}^2 / 3kT, \quad (1)$$

где  $n_s$  — плотность спинов,  $\mu_B$  — магнетон Бора,  $p_{eff}$  — эффективный магнитный момент на атом ( $p_{eff} = 1$  для As в Ge).

При постоянной плотности спинов формула (1) дает известный закон Кюри. Отклонение от этого

\*E-mail: anatoly.veinger@mail.ioffe.ru

\*\*E-mail: tatjana.tisnek@mail.ioffe.ru

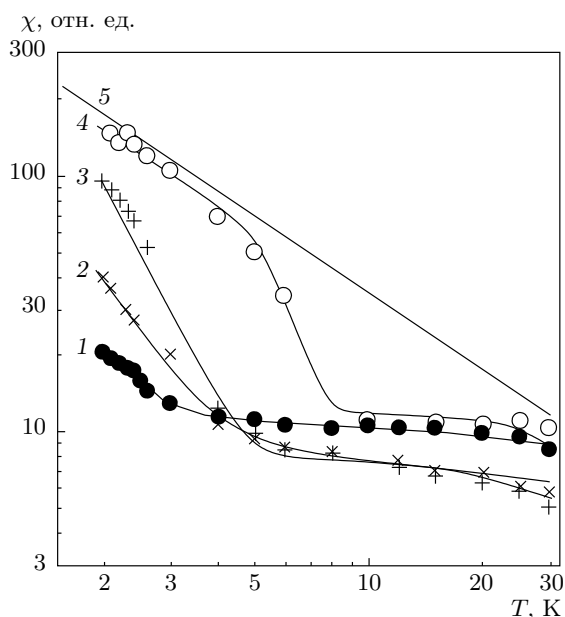


Рис. 1. Поведение магнитной восприимчивости образцов Ge:As с различной компенсацией: кривая 1 — 0; 2 — 0.28; 3 — 0.56; 4 — 0.67; 5 —  $\chi \propto 1/T$  (закон Кюри)

закона происходит за счет изменения плотности спинов, ответственных за сигнал ЭПР, а следовательно, и за парамагнитную примесную восприимчивость. Температурные зависимости магнитной восприимчивости измеренных образцов показаны на рис. 1. На них ясно видны различные участки. Их отклонения от закона Кюри показывают, что плотность спинов в образцах не остается постоянной при изменении температуры. Только при высоких температурах зависимости стремятся к закону Кюри, т. е. плотность спинов становится приблизительно постоянной. В области более низких температур величина  $\chi$  слабо зависит от температуры, что указывает на уменьшение плотности спинов. При дальнейшем понижении температуры магнитная восприимчивость вновь начинает расти, причем этот рост тем сильнее, чем более компенсирован образец. В наиболее компенсированном образце (кривая 4) при самых низких температурах наблюдается закон Кюри с величинами  $\chi$ , значения которых соответствуют той же спиновой плотности, которая наблюдается при высокой температуре.

На рис. 2 представлены температурные зависимости спиновой плотности, которые позволяют более наглядно представить характер магнитного упорядочения. В некомпенсированном образце (кривая 1) при понижении температуры плотность спинов

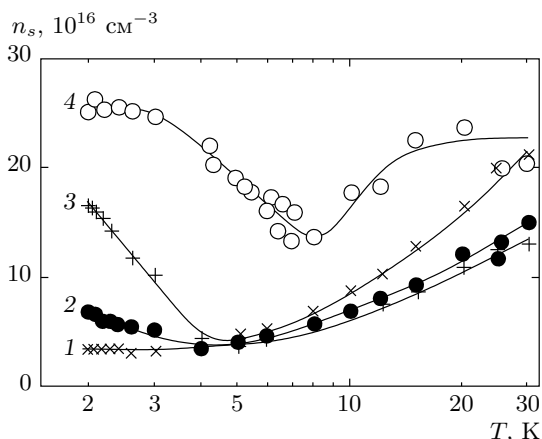


Рис. 2. Поведение спиновой плотности в тех же образцах

$n_s$  уменьшается до некоторого предела, а затем остается постоянной. На компенсированных образцах (кривые 2–4) четко виден характерный минимум в поведении зависимости  $n_s(T)$ . Область с положительным коэффициентом для  $n_s(T)$  была изучена нами ранее [1] и объяснялась антиферромагнитным связыванием, при котором с уменьшением температуры плотность спинов убывает. В результате они перестают давать вклад в ЭПР-поглощение.

В области отрицательного температурного коэффициента концентрация спинов увеличивается с понижением температуры. В наиболее компенсированных образцах она достигает плотности, соответствующей концентрации электронов. Указанный факт свидетельствует об исчезновении антиферромагнитного упорядочения спинов. Но это не значит, что спиновое взаимодействие исчезает. Подтверждение этому выводу мы нашли в поведении эффективной величины  $g$ -фактора, получаемой из измерений с помощью эталона на основании формулы

$$\hbar\omega = g\mu_B H, \tag{2}$$

где  $H$  и  $\hbar\omega$  — магнитное поле и энергия при резонансе.

Температурные зависимости  $g$ -фактора показаны на рис. 3. При понижении температуры на этих зависимостях наблюдается характерный излом с последующим довольно резким возрастанием  $g$ -фактора. Покажем, что он может быть связан с появлением внутреннего магнитного поля. Действительно, при резонансе магнитное поле  $H$  связано с энергией перехода соотношением (2). Тогда, используя находящийся в том же резонаторе эталон, для величины эффективного  $g$ -фактора образца получаем

$$g_{sample} = (gH)_{ref} / H_{sample}. \tag{3}$$

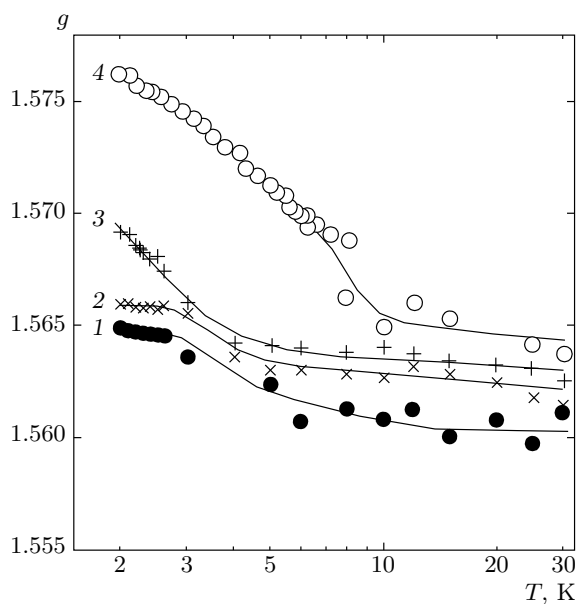


Рис. 3. Поведение  $g$ -фактора для тех же образцов

Увеличение рассчитываемого из формулы (3) эффективного значения  $g$ -фактора при понижении температуры указывает на появление внутреннего поля  $H_{in}$  и соответствующее уменьшение измеряемого поля  $H_{ext}$  при постоянстве резонансного поля,

$$H = H_{in} + H_{ext}. \quad (4)$$

Факт появления внутреннего поля указывает на изменение характера взаимодействия спинов с антиферромагнитного на ферромагнитный при низких температурах.

### 3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

На качественном уровне изменение характера спинового взаимодействия в сильнолегированных полупроводниках можно пытаться понять по аналогии с металлами, исходя из структуры обменного интеграла. Этот интеграл является решением уравнения Хартри–Фока для пары слабо взаимодействующих атомов, каждый из которых содержит один неспаренный спин [6, 7]. В результате взаимного влияния электронов образуется двухуровневая система, содержащая синглет и триплет. Расстояние между уровнями определяется обменной энергией на атом:

$$E_t - E_s = E/N = 3E_F/5 - 3e^2k_F/4\pi = \frac{e^2}{2a_0} \left[ \frac{2.21}{(r_s/a_0)^2} - \frac{0.916}{r_s/a_0} \right], \quad (5)$$

где  $E_t$  и  $E_s$  — энергии триплетного и синглетного уровней,  $E$  — энергия системы,  $N$  — число атомов примеси,  $E_F$  и  $k_F$  — энергия и импульс электрона на уровне Ферми,  $r_s = (3/4\pi N)^{1/3}$  — расстояние между соседними атомами,  $a_0$  — боровский радиус.

Формула (5) определяет разность энергий между синглетным и триплетным уровнями системы двух электронов. Если нижним оказывается синглетный уровень, то спины электронов в паре ориентируются антипараллельно и система оказывается немагнитной. Если же нижним уровнем оказывается триплет, то спины ориентируются параллельно, так что система оказывается ферромагнитной.

Из формулы (5) видно, что в зависимости от величины отношения  $r_s/a_0$  обменная энергия может быть как положительной, так и отрицательной. При больших плотностях электронов первый член оказывается больше второго, нижним уровнем является синглет и система взаимодействующих электронов остается немагнитной. При малых плотностях электронов (больших отношениях  $r_s/a_0$ ) второй член оказывается больше первого, нижним уровнем является триплет, спины электронов ориентируются параллельно и система оказывается ферромагнитной. Рассчитанная граница между этими состояниями для металлов находится при  $r_s/a_0 = 5.45$ .

Первый член в формуле (5) определяется кинетической энергией взаимодействующих электронов, и обмен, обусловленный этим членом, называют кинетическим. Второй член определяется кулоновским взаимодействием и носит название кулоновского или прямого обмена. Для компенсированного полупроводника, в котором наблюдается фазовый переход Андерсона металл–диэлектрик, характерной энергией является энергия на уровне протекания. Если энергия электрона выше уровня протекания, то становится возможным кинетический обмен между парой электронов.

При высокой температуре и малой компенсации большая часть электронов находится выше уровня протекания. При этом они свободно двигаются по кристаллу и основным в формуле (5) является кинетический член. Это значит, что взаимодействующие спины связываются в антипараллельные пары. По мере увеличения компенсации увеличиваются флуктуации дна зоны проводимости, а плотность спинов уменьшается. Это приводит к опусканию уровня Ферми ниже уровня протекания. В этом случае большая часть электронов связывается на своих примесных атомах, и первый член в соотношении (5) становится меньше второго. Нижним уровнем становится триплет, и электроны должны связываться в пары с

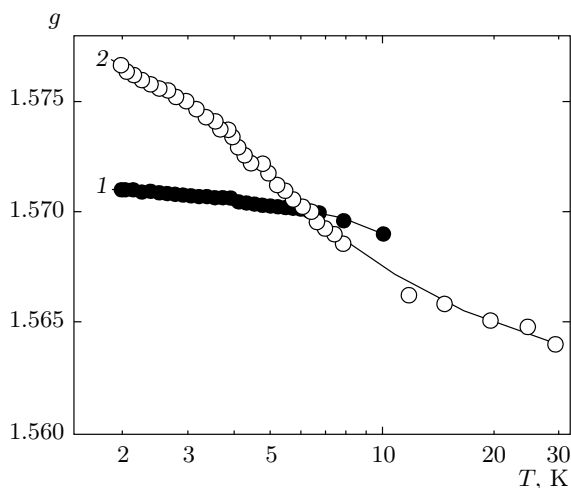


Рис. 4. Температурные зависимости  $g$ -фактора для некомпенсированного (1) и компенсированного (2) образцов Ge:As с одинаковой концентрацией электронов  $N_{As} \approx 2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$

параллельно направленными спинами. К такому же результату приводит и понижение температуры.

Этот переход в ферромагнитное состояние отражается на спектрах ЭПР. Во-первых, амплитуда сигнала увеличивается из-за распада антиферромагнитных пар так, что магнитная восприимчивость увеличивается быстрее, чем это следует из закона Кюри. Этот эффект хорошо заметен на рис. 1. Появление спинов, участвующих в резонансе из-за распада антиферромагнитных пар, видно на рис. 2. В наиболее компенсированных образцах система антиферромагнитных пар полностью распадается, и при низких температурах все спины вновь участвуют в резонансе. Намагниченность образца проявляется в возникновении внутреннего магнитного поля, т. е. в сдвиге  $g$ -фактора, как это уже было показано выше.

Переход от антиферромагнитного связывания спинов к ферромагнитному можно регистрировать по излому температурной зависимости  $g$ -фактора, т. е. по появлению заметного внутреннего поля. На рис. 3 этот излом хорошо заметен. Из анализа таких зависимостей для ряда образцов был сделан вывод о том, что излом наблюдается при компенсации больше 0.3. При меньших компенсациях плотность спинов при низкой температуре растет, но еще недостаточно, чтобы появилось внутреннее поле. При больших компенсациях температура перехода увеличивается почти пропорционально компенсации.

Кроме того, наши эксперименты показали, что изменение только одного параметра — кинетической энергии — недостаточно для описания перехода от

антиферромагнетизма к ферромагнетизму в реальной системе Ge:As. Важную роль играет степень компенсации. Мы исследовали поведение некомпенсированного и компенсированного образцов с одинаковой концентрацией донорных электронов  $N_{As} \approx 2 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ . На рис. 4 показано, как ведет себя  $g$ -фактор в этих образцах. Оказалось, что  $g$ -фактор растет только в компенсированном образце, что указывает на появление внутреннего поля в этом случае.

#### 4. ВЫВОДЫ

1. Вблизи перехода металл–диэлектрик в немагнитном полупроводнике Ge:As наблюдается антиферромагнитное упорядочение спинов, которое при понижении температуры переходит в ферромагнитный порядок. Температура этого перехода увеличивается с ростом компенсации.

2. Эффект качественно объясняется структурой обменного взаимодействия, в которое входит кинетический и кулоновский обмены. По мере уменьшения кинетической энергии соотношение между кинетическим и кулоновским обменами меняется в пользу последнего, что и приводит к появлению ферромагнитного порядка.

Авторы благодарны за финансовую поддержку РФФИ (грант № 10-02-00629), Министерству образования и науки РФ (грант Президента РФ НШ-3008.2012.2), Президиуму и Отделению физических наук РАН и Research Executive Agency ЕС (Program “People”, Proposal 295180).

#### ЛИТЕРАТУРА

1. A. G. Zabrodskii, A. I. Veinger, T. V. Tisnek, and S. I. Goloshchapov, *Appl. Magn. Res.* **35**, 439 (2009).
2. M. A. Paalanen, S. Sachdev, R. N. Bhatt, and A. R. Ruckenstein, *Phys. Rev. Lett.* **37**, 2061 (1986).
3. M. Reznikov, A. Yu. Kuntsevich, N. Teneh, and V. M. Pudalov, *Письма в ЖЭТФ* **92**, 518 (2010).
4. N. Kobayashi, S. Ikehata, S. Kobayashi, and W. Sasaki, *Sol. St. Comm.* **24**, 67 (1977).
5. Ч. Пул, *Техника ЭПР-спектроскопии*, Мир, Москва (1970).
6. C. Herring, *Exchange Interactions Among Itinerant Electrons*, Acad. Press, New York–London (1966).
7. H. Kamimura, In *Crystalline Semiconducting Materials and Devices*, ed. by P. N. Butcher, N. H. March, and M. Tosi, Plenum Press (1986), p. 305.