

Обнаружение примесной диамагнитной восприимчивости и ее поведение в n -Ge:As вблизи фазового перехода изолятор—металл

© А.И. Вейнгер[†], А.Г. Забродский⁺, Т.Л. Макарова^{+,*}, Т.В. Тиснек⁺,
С.И. Голощапов⁺, П.В. Семенихин⁺

[†] Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

^{*} Lappeenranta University of Technology,
FI-53851 Lappeenranta, Finland

(Получена 2 апреля 2015 г. Принята к печати 9 апреля 2015 г.)

Методом СКВИД-магнитометрии измерена и исследована низкотемпературная (температуры $T \leq 100$ К) восприимчивость серии образцов сильно легированного Ge:As на изоляторной стороне фазового перехода изолятор—металл. Вычитанием из нее известных значений магнитной восприимчивости решетки получены значения для примесной магнитной восприимчивости системы. С помощью метода электронного парамагнитного резонанса определена парамагнитная составляющая примесной восприимчивости. Вычитанием из полной примесной восприимчивости ее парамагнитной составляющей впервые получены значения примесной диамагнитной восприимчивости, которые оказались $\sim 5 \cdot 10^{-8}$ см³/г. Полученный результат соответствует оценкам, сделанным для радиуса локализации электрона на доноре As. Понижение температуры в область очень низких значений ($T \leq 4$ К) приводит к возрастанию диамагнитной восприимчивости, практически соответствующему наблюдаемому росту парамагнитной восприимчивости. Наблюдаемый эффект объяснен переходом примесных электронов из синглетного в триплетное состояние.

1. Введение

Чистые (нелегированные) полупроводники Ge и Si, как известно, обладают весьма слабо зависящей от температуры решеточной диамагнитной восприимчивостью χ_{LD} и являются диамагнетиками [1].

Мелкие примеси, вводимые в полупроводник при легировании, имеют один неспаренный электрон или одну дырку, которые дают зависящий от температуры парамагнитный вклад χ_{IP} в магнитную восприимчивость полупроводника χ . С другой стороны, локализованные на примесях при низких температурах носители заряда дают диамагнитный вклад χ_{ID} в χ .

Таким образом, в легированном полупроводнике магнитная восприимчивость помимо решеточной χ_{LD} имеет и примесную составляющую χ_I , в которой можно выделить парамагнитный и диамагнитный вклады. Обсудим поведение каждой из них.

Для решеточной диамагнитной восприимчивости (в единицах emu) грамм-моля вещества теория [1] дает следующее выражение:

$$\chi_{LD} \approx -(Ne^2/6mc^2) \sum_k \langle r_k^2 \rangle = -2.83 \cdot 10^{10} \sum_k \langle r_k^2 \rangle, \quad (1)$$

где $N = 6 \cdot 10^{23}$ моль⁻¹ — число Авогадро, e — заряд электрона, m — масса электрона, c — скорость света, $\langle r^2 \rangle \approx 10^{-16}$ см² — усредненный квадрат радиуса орбиты электрона, вращающегося вокруг одного из атомов решетки. Например, для Ge (масса моля составляет 74 г, в валентной оболочке находятся 4 электрона, удельная

плотность 5.3 г/см³) получаем удельную диамагнитную восприимчивость $\chi_{LD} = -8 \cdot 10^{-7}$ см³/г. Литературные эмпирические данные для Ge в интервале температур от гелиевых до комнатных дают близкий к этой оценке более точный результат [2] со слабой линейной по температуре (T) поправкой:

$$\chi_{LD} = (-5.9 \cdot 10^{-7} + 8.9 \cdot 10^{-11} T) \text{ см}^3/\text{г}. \quad (2)$$

Оценим теперь величину примесной парамагнитной восприимчивости χ_{IP} . При отсутствии взаимодействия спинов температурная зависимость χ_{IP} в случае не очень низких температур ($\gtrsim 1$ К) следует закону Кюри:¹

$$\chi_{IP} = n_s \mu_B^2 p_{ef}^2 / 3kT, \quad (3)$$

где n_s — концентрация спинов, $\mu_B = 9.27 \cdot 10^{-21}$ эрг/Гс — магнетон Бора, p_{ef} — эффективный магнитный момент на атом, $k = 1.38 \cdot 10^{-16}$ эрг/К — постоянная Больцмана.²

При характерной для точки фазового перехода изолятор—металл в Ge:As концентрации примесей $n_s \sim 10^{17}$ см⁻³ из (3) при $T = 2$ К и $p_{ef} = 1$ получаем оценку:

$$\chi_{IP} \approx 10^{-8} \text{ см}^3/\text{г}. \quad (4)$$

Отметим, что выполненные нами ранее эксперименты показывают важную роль антиферромагнитного взаимодействия спинов в области фазового перехода

¹ На частоте 10 ГГц в поле 4 кЭ расщепление парамагнитных уровней имеет порядок 0.1 К. Для соблюдения закона Кюри температура эксперимента должна быть существенно выше этой температуры.

² Для s -состояния, которым описываются электроны в классических полупроводниках, $p_{ef} = 1$.

[†] E-mail: anatoly.veinger@mail.ioffe.ru

изолятор–металл (ИМ) в Ge:As при низких температурах [3,4]. Это уменьшает величину парамагнитной восприимчивости по сравнению с получаемой экстраполяцией из области высоких температур, где работает закон Кюри. Таким образом, приведенная выше оценка для χ_{IP} является предельной сверху. Видим, что примесная парамагнитная восприимчивость всегда мала по сравнению с абсолютным значением диамагнитной решеточной восприимчивости.

Займемся теперь оценкой ожидаемой величины диамагнитной восприимчивости для электронов, локализованных на примесях [1]:

$$\chi_{ID} = -(n_s e^2 / 6m^* c^2) \langle r_B^2 \rangle, \quad (5)$$

где m^* — эффективная электронная масса плотности состояний, r_B — боровский радиус электронной орбиты на примеси.

Заметим, что в точке перехода ИМ обращается в бесконечность статическая диэлектрическая проницаемость и расходится радиус локализации электрона [5], а с ним и значение χ_{ID} , как это следует из формулы (5). Если не очень близко от точки перехода в качестве значения радиуса локализации мы можем использовать величину боровского радиуса $r_B \approx 5 \cdot 10^{-7}$ см, то с приближением к точке перехода достигаются и более высокие значения по сравнению со средним расстоянием между примесями. Тогда при характерных для близких к точке перехода в Ge:As „изоляторных“ образцов с концентрацией электронов $n_s \approx 10^{17}$ см⁻³ получаем оценку величины примесной диамагнитной восприимчивости:

$$\chi_{ID} \approx (0.7-7) \cdot 10^{-8} \text{ см}^3/\text{г}. \quad (6)$$

Таким образом, мы ожидаем, что обе (парамагнитная и диамагнитная) составляющие примесной магнитной восприимчивости малы по сравнению с решеточной диамагнитной восприимчивостью и могут быть соизмеримы. Чтобы достичь наибольших значений примесной диамагнитной восприимчивости, согласно формуле (5), надо проводить измерения на образцах с предельными значениями n_s и r_B , т.е. вблизи точки перехода ИМ на его изоляторной стороне.

Для измерения малых значений магнитной восприимчивости используются главным образом две методики: электронный парамагнитный резонанс (ЭПР) и квантовая интерферометрия на сверхпроводниках (СКВИД).

Методика ЭПР позволяет непосредственно измерить парамагнитную составляющую примесной восприимчивости χ_{IP} . К сожалению, не все парамагнитные примеси можно изучать с помощью методики ЭПР. Таковыми, нерегистрируемыми, в частности, являются мелкие акцепторы в Ge, которые обычно не проявляются в ЭПР из-за большой скорости релаксации спина [6]. Кроме этого, вблизи фазового перехода ИМ в полупроводниках возникает также техническая проблема измерения парамагнитной восприимчивости методом ЭПР, связанная с искажением резонансной линии в проводящих

кристаллах [7,8]. В связи с этим методом ЭПР трудно измерить абсолютное значение χ_{IP} . Эту трудность нам удалось преодолеть в работе [9], посвященной анализу дайсоновской формы спектральной линии.

СКВИД-магнетометр измеряет сумму всех вкладов в магнитную восприимчивость независимо от ее природы:

$$\chi = \chi_{LD} + \chi_I = \chi_{LD} + \chi_{IP} + \chi_{ID}. \quad (7)$$

Наибольший вклад в χ дает, как мы видели, первое слагаемое — решеточная восприимчивость χ_{LD} . Предметом же данной работы является исследование примесной восприимчивости χ_I , имеющей парамагнитную и диамагнитную составляющие, χ_{IP} и χ_{ID} , или, другими словами, задача выделения малых величин. Поэтому анализ результатов измерений связан с задачей выделения малых величин χ_{ID} из относительно больших измеряемых значений χ и соизмеримых значений χ_{IP} .

Следует учитывать также, что наличие посторонних магнитных примесей может исказить результаты измерений в обоих методах, как СКВИД, так и ЭПР.

Итак, цель настоящей работы состояла в экспериментальном определении примесной диамагнитной восприимчивости χ_{ID} путем вычитания из измеряемых методом СКВИД значений полной магнитной восприимчивости χ значений решеточной магнитной восприимчивости χ_{LD} и примесной парамагнитной восприимчивости χ_{IP} , полученной с помощью методики ЭПР:

$$\chi_{ID} = \chi_I - \chi_{IP} = \chi - \chi_{LD} - \chi_{IP}. \quad (8)$$

2. Образцы и методики измерения магнитной восприимчивости

Образцы. Для исследования ожидаемых малых значений примесной диамагнитной восприимчивости χ_{ID} была использована полупроводниковая примесная система Ge:As, полученная путем нейтронного трансмутационного легирования германия, предварительно легированного мышьяком с концентрацией $N = 3.6 \cdot 10^{17}$ см⁻³. Путем увеличения дозы облучения образцы Ge все более удалялись в сторону изолятора от точки перехода ИМ (концентрация электронов $n \approx 3.7 \cdot 10^{17}$ см⁻³) из-за преимущественного введения компенсирующей примеси Ga [10]. Заметим также, что очистка Ge от магнитных примесей в объеме является освоенным промышленным процессом. Исследованная система хорошо охарактеризована с точки зрения электрофизических параметров.

Важное для наших целей обстоятельство заключается в том, что g -фактор линии резонансного поглощения для мелких доноров в Ge $g \approx 1.6$, в то время как для большинства других материалов $g \approx 2$. Поэтому резонансные линии мелких примесей в Ge не искажаются далеко отстоящими от них фоновыми резонансными линиями. В результате этого для измерений ЭПР можно избежать проблемы парамагнитной „грязи“.

Таблица 1. Параметры образцов

Номер образца	Концентрация электронов n , 10^{17} см^{-3}	Концентрация мышьяка N_{As} , 10^{17} см^{-3}	Степень компенсации, $K = N_{\text{Ga}}/N_{\text{As}}$
1	3.49	3.63	0.04
2	3.25	3.76	0.14
3	3.00	3.89	0.23
4	2.86	3.97	0.28
5	2.35	4.24	0.44
6	1.95	4.46	0.56
7	1.91	4.48	0.57
8	1.89	4.49	0.58
9	1.56	4.67	0.67
10	1.52	4.69	0.68
11	1.44	4.73	0.69

Параметры образцов приведены в таблице 1.

Метод ЭПР. В настоящей работе диапазон измерений примесной парамагнитной восприимчивости χ_{IP} методом ЭПР был расширен по сравнению с работами [3,4] в сторону низких температур (до 2 К). Была также повышена их точность. Для определения χ_{IP} в сильно легированных образцах с дайсоновской резонансной линией [7] использовался метод, разработанный авторами на основе исследований ЭПР в металлах [8]. Этот метод позволяет определять относительную величину χ с точностью не хуже 15%. Измерения проводились на спектрометре ЭПР E-112 „VARIAN“ с криостатом ESR-910 „OXFORD INSTRUMENTS“ и цифровой системой регистрации. Магнитное поле устанавливалось с точностью до 6 знаков. Точность измерения амплитуды определялась отношением сигнал/шум. Цифровая запись сигнала позволяла не только повышать отношение сигнал/шум, но и облегчала дальнейшую обработку.

Для определения абсолютного значения примесной парамагнитной восприимчивости χ_{IP} дважды проинтегрированный сигнал от исследуемого образца I_S сравнивался со вторым интегралом сигнала от эталонного образца I_{st} . Использовался эталон фирмы „VARIAN“ в виде трубки диаметром 4 мм, заполненной смесью каменноугольной смолы и КСl с концентрацией спинов $2.58 \cdot 10^{15}$ на 1 см длины трубки. Резонатор имел две пучности магнитного поля (мода TE₁₀₃), в одну из которых вводился эталон, находившийся при $T = 300$ К, а в другую помещался криостат с образцом, температура которого могла изменяться от комнатной до 2 К. Поскольку температура эталона оставалась постоянной, по формуле (3) определялась магнитная восприимчивость эталона при $T = 300$ К: $\chi_{\text{st}} = 1.8 \cdot 10^{-10}$ ед. Интересующая нас магнитная восприимчивость образца находилась из простой пропорции:

$$\chi_{\text{IP}} = 1.8 \cdot 10^{-10} I_S / I_{\text{st}}. \quad (9)$$

Поскольку значения сигналов ЭПР зависят не только от температуры, но и от добротности резонатора спек-

трометра, измерения обоих сигналов проводились в каждой температурной точке. Таким образом, учитывалось изменение добротности резонатора с температурой [9].

СКВИД-магнитометрия. Для измерения магнитной восприимчивости с помощью СКВИД использовался прибор MPMS-XL-1, работавший в диапазоне температур $T = 1.7\text{--}100$ К и магнитных полей до 10 кЭ. Использование функции „reciprocal sample option“ повышало точность абсолютных измерений магнитного момента до $10^{-9} \text{ см}^3/\text{г}$. Этого было достаточно, чтобы на фоне диамагнитной решеточной восприимчивости $\sim 10^{-7} \text{ см}^3/\text{г}$ (см. (2)) определить вклад примесной восприимчивости χ_1 на уровне $10^{-8} \text{ см}^3/\text{г}$ и менее.

3. Примесная парамагнитная восприимчивость из данных магнитометрии ЭПР

В качестве репрезентативных были выбраны 4 образца серии Ge:As: образцы 1, 2, 5 и 8 (табл. 1) со степенями компенсации от 4 до 60%. Увеличение номера соответствует удалению образца от точки перехода ИМ.

Полученные для этих образцов из анализа сигнала ЭПР температурные зависимости парамагнитной восприимчивости χ_{IP} представлены на рис. 1. Там же для сравнения приведена реперная зависимость $\chi_{\text{IP}} \propto 1/T$, соответствующая закону Кюри.

Из рисунка следует, что все кривые имеют схожее поведение, с тремя характерными участками. При высоких температурах ($50 \geq T \geq 20$ К) наблюдается близкая к закону Кюри зависимость $\chi_{\text{IP}}(T)$, насыщающаяся при более высоких температурах, как это имеет место в „грязных“ металлах. В области промежуточных температур, $20 \geq T \geq 5$ К, $\chi_{\text{IP}}(T)$ практически не зависит от температуры. Такое поведение соответствует уменьшению плотности изолированных спинов по сравнению с той, которая определяет закон Кюри при более высоких

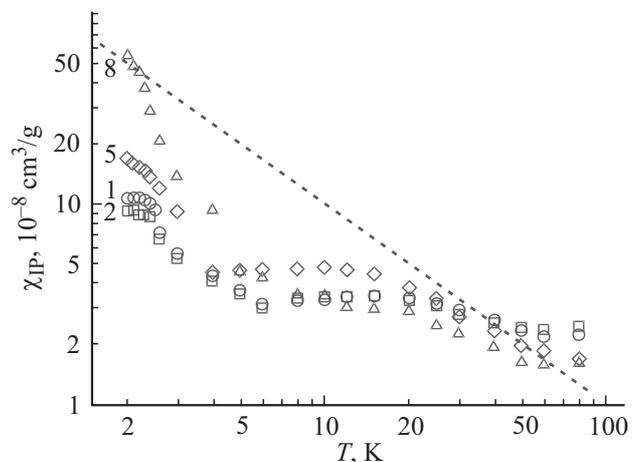


Рис. 1. Температурные зависимости парамагнитной восприимчивости репрезентативных образцов Ge:As 1, 2, 5, 8 из измерений ЭПР. Прямая — закон Кюри.

температурах. Подобное отклонение от закона Кюри было объяснено локальным антиферромагнитным спариванием, которое наблюдается вблизи фазового перехода ИМ при низких температурах [3,4].

В области более низких температур, $T \leq T^*$ ($T^* \approx 4-6$ К), наблюдается эффект резкого возрастания χ_{IP} . При самых низких температурах ($T \leq 2.5$ К) зависимость $\chi_{IP}(T)$ ослабевает и насыщается для наименее компенсированных и наиболее близких к переходу ИМ образцов.

Аномальный рост $\chi_{IP}(T)$ в области низких температур был впервые описан нами в [11] и объяснен изменением характера спинового спаривания от антиферромагнитного к ферромагнитному. В основе объяснения этого эффекта лежит предсказанное Х. Камимурой [12] изменение характера обменного взаимодействия при низких температурах, предложенное им для обоснования аномального поведения теплоемкости легированного Si:P при температуре < 1.5 К. Согласно [12], на изоляторной стороне перехода ИМ в Si:P при достаточно низких температурах кинетический обмен сменяется прямым (кулоновским) обменом.³ Важно отметить, что такое изменение характера обмена проявляется во всех измеренных нами компенсированных образцах Ge:As. При этом граница области существования ферромагнитной фазы и область перехода к антиферромагнитному упорядочению сдвигаются к большим температурам с ростом компенсации.

4. Исключение диамагнетизма решетки и определение примесной магнитной восприимчивости из данных СКВИД-магнитометрии

Как отмечалось выше, для извлечения примесной магнитной восприимчивости χ_I из измеренных СКВИД-магнетрометром значений магнитной восприимчивости χ следует вычесть восприимчивость решетки χ_{LD} , известную из литературных данных:

$$\chi_I = \chi - \chi_{LD}. \quad (10)$$

Полученные с помощью такой процедуры температурные зависимости примесной магнитной восприимчивости χ_I для репрезентативных образцов 1, 2, 5 и 8 приведены на рис. 2. Из рисунка видно, что во всем интервале температур температурные зависимости χ_I гораздо слабее по сравнению с законом Кюри. Кроме этого, знак χ_I в случае наиболее компенсированного образца 8 при $T \geq 6$ К отрицателен. Эти факты свидетельствуют о том, что в определенные на основании формулы (10) значения примесной магнитной восприимчивости заметный вклад вносит ее диамагнитная составляющая χ_{ID} .

³ Кинетический обмен имеет место при термической делокализации электронов на уровне Ферми. Прямой (кулоновский) обмен возникает, когда электроны „вымораживаются“ на примеси и локализируются.

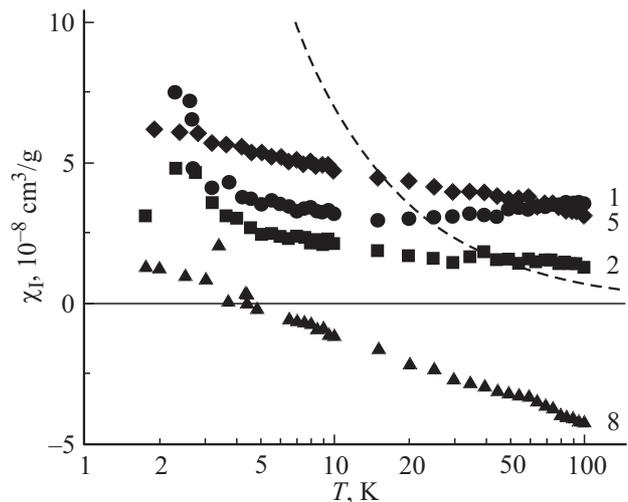


Рис. 2. Температурные зависимости примесной магнитной восприимчивости репрезентативных образцов 1, 2, 5, 8. Штриховая кривая — закон Кюри.

5. Выделение примесной диамагнитной восприимчивости

На рис. 3, *a, b, c, d* для каждого из четырех образцов представлены попарно температурные зависимости χ_{IP} и χ_I . Основное качественное различие их поведения заключается в том, что в среднем температурный коэффициент χ_I оказывается значительно меньше, чем χ_{IP} . При этом с ростом компенсации уменьшается температурный коэффициент кривых в области низких температур, $T \leq 10$ К.

Перейдем теперь к анализу полученных результатов.

В силу отрицательного знака χ_{ID} следует ожидать выполнения неравенства

$$\chi = \chi_{IP} + \chi_{ID} < \chi_{IP}. \quad (11)$$

Измерения показали, что оно выполняется примерно для половины образцов, как это имеет место для образцов 2 и 8, показанных на рис. 3, *b, d*. Для образцов 1 и 5 (рис. 3, *a, c*) существуют области температур, где неравенство (11) не выполняется.

Нарушения неравенства (11) объясняются тем, что при СКВИД-измерениях нам не удалось исключить случаи попадания „грязи“ с положительной восприимчивостью в измеряемый объем.

Влияние „грязи“ наиболее заметным образом проявилось при измерениях χ_I исходного некомпенсированного образца и образцов 4 и 10, результаты которых показаны на рис. 4. Видно, что для этих образцов неравенство (11) нарушается во всем или почти во всем диапазоне температур. К счастью, как оказалось, восприимчивость „грязи“ практически не зависит от температуры и не влияет на особенности температурных зависимостей измеряемых значений χ_I .⁴

⁴ Предположительно речь идет о следах железа, попавшего на поверхность образца. Его магнитная восприимчивость в измеренном интервале температур и полей является постоянной.

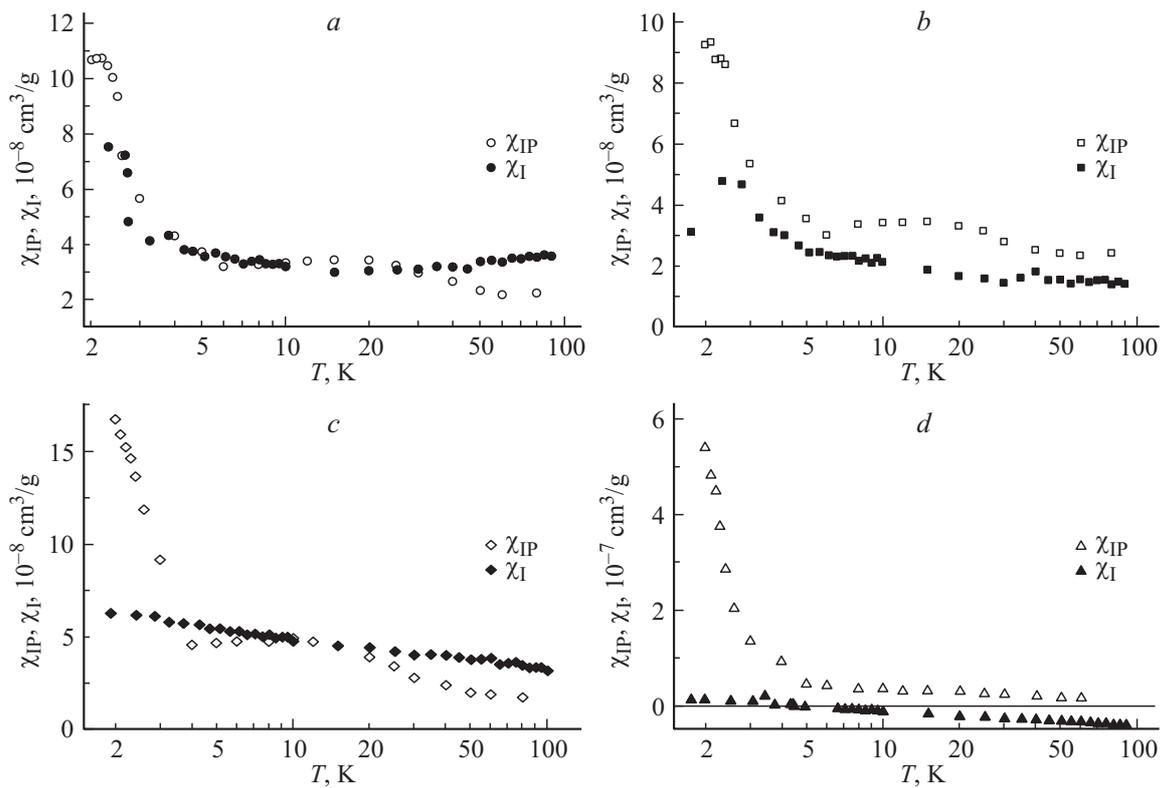


Рис. 3. Сравнение температурных зависимостей χ_{IP} и χ_I , представленных на рис. 1 и 2 для образцов 1 (a), 2 (b), 5 (c), 8 (d).

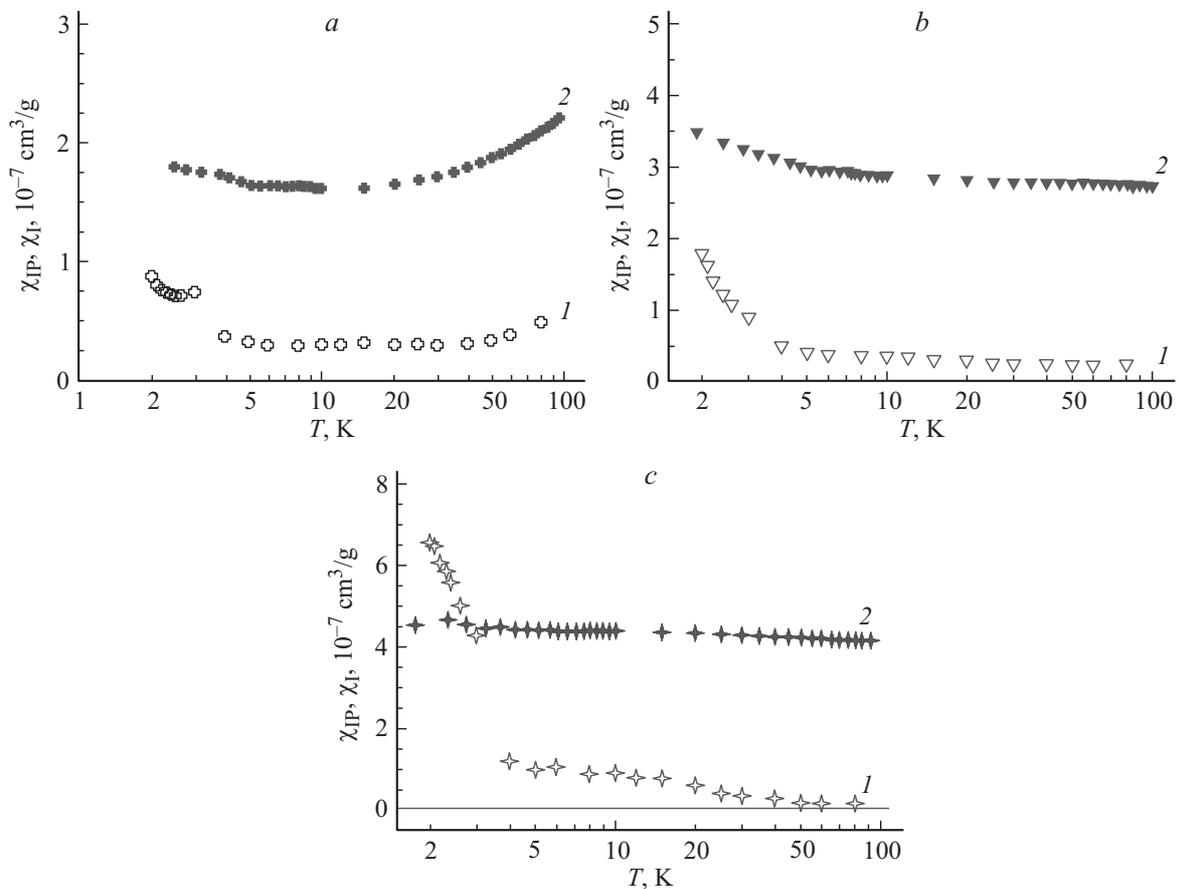


Рис. 4. Сравнение температурных зависимостей χ_{IP} (1) и χ_{IP} (2) для трех аномальных образцов 4(b), 10 (c). a — исходный некомпенсированный образец.

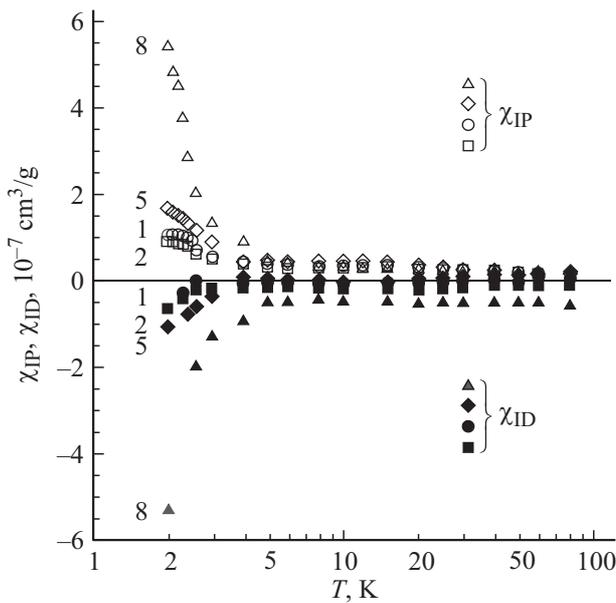


Рис. 5. Температурные зависимости магнитной восприимчивости репрезентативных образцов Ge:As 1, 2, 5, 8.

Перейдем теперь к искомой величине примесной диамагнитной восприимчивости

$$\chi_{ID} = \chi_I - \chi_{IP} \tag{12}$$

На рис. 5 показаны температурные зависимости χ_{ID} для образцов 1, 2, 5 и 8. Видно, что при $T \geq T^*$ ($T^* \approx 3-5$ К) интересующая нас температурная зависимость χ_{ID} достаточно слаба. Однако при более низких температурах, $T \leq T^*$, χ_{ID} начинает резко убывать.

Остановимся детальнее на случае высоких температур, $T \geq T^*$. Аппроксимируем слабые температурные зависимости χ_{ID} горизонтальными отрезками, минимизируя среднеквадратичные отклонения. Полученные таким образом аппроксимации высокотемпературных значений для всей серии образцов представлены в табл. 2.

Таблица 2. Результаты аппроксимации слабых зависимостей $\chi(T)$ на рис. 5

Номер образца	$\chi(+)$, см ³ /г	$\chi(0)$, см ³ /г	$\chi(-)$, см ³ /г
1	$1.33 \cdot 10^{-7}$		
2		$5 \cdot 10^{-9}$	
3		$-1.15 \cdot 10^{-8}$	
4	$2.5 \cdot 10^{-7}$		
5		$1 \cdot 10^{-8}$	
6			$-6.4 \cdot 10^{-8}$
7			$-5.4 \cdot 10^{-8}$
8			$-4.6 \cdot 10^{-8}$
9		$1 \cdot 10^{-8}$	
10	$3.7 \cdot 10^{-7}$		
11			$-3.7 \cdot 10^{-8}$

В столбце $\chi(+)$ табл. 2 показаны явно аномальные значения, обусловленные „грязью“. В столбце $\chi(0)$ приведена группа значений, оказавшихся близкими к нулю (небольшое содержание „грязи“). В столбце $\chi(-)$ приведены данные по образцам, где влияние „грязи“ пренебрежимо мало. Усредняя результаты этого столбца, получаем искомую оценку значения примесной диамагнитной восприимчивости в области ее независимости от температуры (при $T \geq T^*$):

$$\chi_{ID} \approx 5 \cdot 10^{-8} \text{ см}^3/\text{г} \tag{13}$$

Перейдем теперь к поведению χ_{ID} при низких температурах, $T \leq T^*$. Отметим здесь экспериментальный факт, состоящий в том, что с повышением компенсации увеличивается температурный коэффициент низкотемпературных участков убывания χ_{IP} и возрастает примерно от 3 до 5 К высокотемпературная граничная температура T^* , которая характеризует начало этого убывания. Другой экспериментальный факт состоит в том, что в этой области температур поведение абсолютных значений диамагнитной примесной восприимчивости качественно соответствует поведению парамагнитной восприимчивости.

6. Обсуждение результатов

Начнем с поведения примесной диамагнитной восприимчивости χ_{ID} при высоких температурах, $T \geq T^*$. Полученная в настоящей работе экспериментальная оценка (13), как видно, в 7 раз превышает минимальную теоретическую (5) для случая сильной локализации, когда радиус локализации равен боровскому. Однако, если учесть, что значение радиуса локализации электрона с приближением к фазовому переходу ИМ возрастет и может заметно превышать величину боровского радиуса для изолированного донора [5], то согласие с экспериментом надо признать удовлетворительным. Кроме этого, следует обратить внимание на большую относительную погрешность полученного результата (13), которая составляет величину $\sim 50\%$.

Перейдем теперь к поведению примесной диамагнитной восприимчивости при низких температурах ($T \leq T^*$). Подчеркнем, что оно с точностью до знака качественно соответствует поведению низкотемпературных участков температурных зависимостей парамагнитной восприимчивости χ_{IP} . Для удобства сравнения на рис. 5 воспроизведены кривые для χ_{IP} из рис. 1 в соответствующем масштабе. Характерными особенностями зависимостей обеих величин при низких температурах является эффект возрастания их абсолютных значений с понижением температуры. При этом в обоих случаях по мере компенсации и удаления от точки перехода возрастает как температурный коэффициент зависимостей $\chi_{IP}(T)$, $\chi_{ID}(T)$, так и значения высокотемпературной границы такого поведения T^* . Это сходство побуждает искать единое качественное объяснение для

наблюдаемых особенностей низкотемпературного поведения χ_{P} и χ_{ID} .

Ключевым моментом для понимания указанных особенностей является обнаруженный ранее авторами [11] по поведению χ_{P} переход от локального антиферромагнитного упорядочения спинов, локализованных на примесях, к их локальному ферромагнитному упорядочению. По принципу Паули смена антипараллельной ориентации в спиновой паре на параллельную приводит к трансформации орбиты электрона из сферически симметричного s -состояния в более „плоское“ p -состояние с большими характерными значениями боровского радиуса. Такой трансформации соответствует возрастание поляризуемости и соответственно значений χ_{ID} , что качественно объясняет наблюдаемое на опыте возрастание абсолютных значений χ_{ID} в низкотемпературной области $T \leq T^*$.

7. Заключение

Таким образом, путем использования методик СКВИД и ЭПР измерения магнитной восприимчивости, а также литературных данных по решеточной магнитной восприимчивости Ge выделен вклад диамагнитной составляющей в примесную магнитную восприимчивость системы Ge:As вблизи фазового перехода ИМ.

В области относительно высоких температур, $100 \geq T \geq T^*$, $T^* = 3\text{--}5\text{ K}$, диамагнитная примесная восприимчивость характеризуется значениями $\sim (-5 \cdot 10^{-8}) \text{ см}^3/\text{г}$, которые в пределах точности измерений практически не зависят от температуры и степени компенсации образцов.

В области низких температур, $T \leq T^*$, $T^* = 3\text{--}5\text{ K}$, диамагнитная примесная восприимчивость увеличивается по абсолютной величине с понижением температуры. Соответствующий температурный коэффициент и значение характерной температуры T^* возрастают по мере компенсации и удаления от точки перехода ИМ.

Имеет место качественная аналогия в поведении при низких температурах абсолютных значений диамагнитной и парамагнитной составляющих примесной магнитной восприимчивости.

Увеличение примесной диамагнитной восприимчивости может быть объяснено увеличением радиусов электронных орбит при переходе системы спинов из s - в p -состояние с увеличением характерного радиуса локализации.

Авторы выражают благодарность Р.А. Бабунцу (ФТИ им. А.Ф. Иоффе) за разработку и изготовление блока цифровой регистрации сигнала ЭПР.

Авторы благодарны за финансовую поддержку Российскому фонду фундаментальных исследований (грант № 13-02-00360а), Министерству образования и науки Российской Федерации (грант президента РФ НШ-347.2014.2.), Президиуму и Отделению физических наук РАН и Research Executive Agency ЕС (Marie Curie—IRSES—295180 MagNonMag).

Список литературы

- [1] С.В. Вонсовский. *Магнетизм* (М., Наука, 1971).
- [2] D.K. Stevens, J.W. Cleland, J.H. Crawford, H.C. Schweinler. *Phys. Rev.*, **100**, 1084 (1955).
- [3] А.И. Вейнгер, А.Г. Забродский, Т.В. Тиснек, С.И. Голощапов. *ФТП*, **41**, 812 (2007).
- [4] А.И. Вейнгер, А.Г. Забродский, Т.В. Тиснек, С.И. Голощапов. *ФТП*, **42**, 1301, (2008).
- [5] А.Г. Забродский, К.Н. Зиновьева. *ЖЭТФ*, **86**, 727 (1984).
- [6] Дж. Людвиг, Г. Вудбери. *Электронный спиновый резонанс в полупроводниках* (М., Мир, 1964).
- [7] F.J. Dyson. *Phys. Rev.*, **98**, 349 (1955).
- [8] G. Feher, A.F. Kip. *Phys. Rev.*, **98**, 337 (1955).
- [9] А.И. Вейнгер, А.Г. Забродский, Т.В. Тиснек, С.И. Голощапов, П.В. Семенихин. *ЖЭТФ*, **83** (12), 103 (2013).
- [10] М.В. Алексеенко, А.Г. Забродский, Л.М. Штеренгас. *ФТП*, **32**, 811 (1998).
- [11] А.И. Вейнгер, А.Г. Забродский, Т.В. Тиснек, С.И. Голощапов, П.В. Семенихин. *ЖЭТФ*, **143**, 918 (2013).
- [12] H. Kamimura. *In: Crystalline Semiconducting Materials and Devices*, ed. by P.N. Butcher, N.H. March, M. Tosi (Plenum, 1986).

Редактор Л.В. Шаронова

Determination of impurity diamagnetic susceptibility and its behavior in Ge:As in the vicinity of insulator—metal phase transition

A.I. Veinger⁺, A.G. Zabrodskii⁺, T.L. Makarova⁺⁺, T.V. Tisnek⁺, S.I. Goloshchapov⁺, P.V. Semenikhin⁺

⁺ Ioffe Physicotechnical Institute, Russian Academy of Sciences, 194021 St. Petersburg, Russia

⁺⁺ Lappeenranta University of Technology, FI-53851 Lappeenranta, Finland

Abstract Low-temperature ($T \leq 100\text{ K}$) magnetic susceptibility of heavily doped Ge:As has been investigated in the vicinity of the metal—insulator phase transition on the insulating side. The integral magnetic susceptibility of the entire sample as a whole measured by SQUID magnetometry consists of several contributions: diamagnetic susceptibility of Ge lattice, diamagnetic and paramagnetic terms of As donor impurity. The value of the total impurity-related magnetic susceptibility was obtained by subtracting the known value of lattice diamagnetic susceptibility from the integral value of magnetic susceptibility. Paramagnetic component of the impurity magnetic susceptibility was measured by ESR magnetometry. Diamagnetic susceptibility of arsenic donor impurity was determined by subtracting paramagnetic component from total impurity susceptibility. The value of the impurity diamagnetic susceptibility equals to $5 \cdot 10^{-8} \text{ cm}^3/\text{g}$. The obtained result fits well to the values estimated for electron localization radius of the As donor in Ge. Below 4 K, the temperature decrease leads to an increase in absolute values of both paramagnetic and diamagnetic terms of As donor magnetic susceptibility. The observed effect is explained by transition of impurity electrons from the singlet state to the triplet one.