Разогрев магнонов горячими носителями заряда и электрические свойства HgCr₂Se₄

© Н.И. Солин, А.А. Самохвалов, С.В. Наумов

Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук, 620219 Екатеринбург, Россия

(Поступила в Редакцию 21 октября 1996 г.)

В ферромагнитном полупроводнике HgCr₂Se₄ обнаружены сильные изменения электропроводности и постоянной Холла в зависимости от напряженности магнитного и электрического полей. Природа этих явлений обсуждена в связи с электронной структурой и реализацией в этом магнитном полупроводнике сильного взаимодействия между электрической и магнитной подсистемами. Результаты могут быть интерпретированы в рамках модели обычных полупроводников с учетом специфического для магнитных полупроводников сильного электрон-магнонного взаимодействия: разогрева магнонов горячими носителями заряда и локализация носителей заряда (образования ферронов) за счет *s*-*d*-обменного взаимодействия.

В сильном электрическом поле обнаружены изменения намагниченности, электропроводности, затухания магнитостатических волн (МСВ) и других свойств магнитного полупроводника HgCr₂Se₄ [1]. Большинство этих экспериментов объясняется разогревом магнонов горячими носителями заряда [1-3]. Очевидно, что изменения электрических свойств в сильном электрическом поле непосредственно связаны с механизмом электропроводности магнитного полупроводника. Работы, посвященные влиянию электрического поля на физические свойства в связи с механизмом электропроводности HgCr₂Se₄, нам неизвестны. В связи с этим мы провели исследования электропроводности σ и постоянной Холла R₀ в слабых и сильных электрических полях на одних и тех же монокристаллах HgCr₂Se₄ в магнитных полях до 12 Т в температурном интервале 4.2-200 К. Кристаллы были приготовлены по технологии [4] и некоторые из них дополнительно отжигались при малых давлениях ($\leq 10^5$ Pa) паров ртути. Именно на таких образцах HgCr₂Se₄ обнаружены сильные эффекты электрон-магнонного взаимодействия: изменение затухания и спектра МСВ [5,6], изменение сверхвысокочастотной (СВЧ) диэлектрической проницаемости [7], возникновение СВЧ-колебаний [8] в сильном электрическом поле и др. Для исключения джоулевого разогрева исследования в сильном электрическом поле проведены в импульсном режиме с импульсами с длительностью $2-4\,\mu\mathrm{s}$ и с частотой повторения 16 Hz. Измерения σ и R₀ проведены пятиконтактным методом. Образцы размером $3 \times 1 \times 0.3$ mm были вырезаны в плоскости [111], магнитное поле было перпендикулярно этой плоскости.

1. Результаты

Известно [9–14], что недопированные as grow-кристаллы $HgCr_2Se_4$ в парамагнитной области имеют полупроводниковый характер электропроводности *p*-типа, а в ферромагнитной области — слабо зависящую от температуры проводимость *n*-типа. Отжиг при малых давлениях паров ртути существенно не меняет характера электропроводности в парамагнитной области (рис. 1). Но в ферромагнитной области электропроводность этих образцов существенно меняется: она имеет металлический характер, резко (до $10^3 - 10^4$ раз) увеличивается при переходе в ферромагнитную область и сильно зависит от магнитного поля.

На рис. 1 приведены зависимости удельного электросопротивления $\rho = 1/\sigma$ и нормальной постоянной Холла R_0 от температуры T, а на рис. 2, 3 — зависимости ρ и R_0 от напряженности электрического поля E при 53 К для двух образцов HgCr₂Se₄, приготовленных при разных условиях. Оба образца имеют p-тип проводимости в парамагнитной, n-тип проводимости в ферромагнитной области температур. Во внешнем магнитном поле $H_0 = 12$ Т температура инверсии типа проводимости носителей заряда увеличивается от 95 до 130 К. Из рисунков видно, что магнитное поле уменьшает, а электрическое поле увеличивает электросопротивление образцов. Из рис. 1–3 видно качественное соответствие между зависимостями $\rho(T)$ и $\rho(E)$, $R_0(T)$ и $R_0(E)$:



Рис. 1. Температурные зависимости удельного электросопротивления ρ (*1*-4) и постоянной Холла R_0 (5, 6) образцов HgCr₂Se₄ № 1 (*1*, 2) и № 2 (*3*-6) в магнитном поле 2 (*1*, 3, 5) и 12 T (*2*, 4, 6). На вставке — электросопротивление в крупном масштабе.



Рис. 2. Зависимости постоянной Холла R_0 (1, 2) и концентрации *п* электронов (3, 4) от напряженности электрического поля образцов HgCr₂Se₄ No 1 (1, 3) и No 2 (2, 4) при 53 K.

значения ρ монотонно возрастают с ростом T и E, а значения R₀ имеют максимум в зависимостях от T и Е. Максимальные значения R_0 в зависимостях от T и Е не одинаковы (рис. 1 и 2) и различаются в 5-10 раз. Из исследований на этих и других образцах HgCr₂Se₄ обнаружено соответствие между зависимостью $\rho(T)$ и зависимостями ρ от E и H: чем сильнее уменьшается $\rho(T)$ при переходе от полупроводникового характера проводимости к металлическому, тем сильнее изменяется ρ в зависимости от *H* и *E* в ферромагнитной области температур. Видно (рис. 1), что указанное изменение $\rho(T)$ в образце № 1 меньше, чем в образце № 2. Соответственно для образцов № 1 и 2 в магнитном поле 12 Т ρ уменьшается в 250 и 30 раз (T = 80 K), а в электрическом поле $E \cong 1$ kV/cm ρ увеличивается в 10 и 3 раза (рис. 3). В отожженных кристаллах сильные изменения $\rho(E)$ обнаружены только в ферромагнитной



Рис. 3. Зависимости удельного электросопротивления ρ (1, 2) и подвижности электронов μ (3, 4) от напряженности электрического поля образцов HgCr₂Se₄ No 1 (1, 3) и No 2 (2, 4) при 53 K.

Физика твердого тела, 1997, том 39, № 4



Рис. 4. Температурные зависимости концентрации n (1, 3) и подвижности μ электронов (4–6) образцов HgCr₂Se₄ № 1 (3, 6) и № 2 (1, 2, 4, 5) в магнитных полях 2 (1, 3, 4) и 12 T (2, 5, 6).

области. В неотожженных образцах HgCr₂Se₄, в которых ρ слабо зависит от T в ферромагнитной области, изменения ρ в сильных электрическом и магнитном полях малы и составляют около 10% в ферромагнитной области. Эти результаты согласуются с данными [9,15].

При низких температурах (вдали от экстремумов R_0 , отмеченных стрелками на рис. 1, 2) результаты можно объяснить в основном влиянием только одного типа носителей заряда — электронов. На рис. 4 приведены вычисленные в этом предположении температурные зависимости холловской концентрации и подвижности электронов. Видно (рис. 4), что с повышением температуры уменьшаются, а с увеличением напряженности магнитного поля увеличиваются как концентрация, так и подвижность носителей заряда.

2. Обсуждение результатов

Электропроводность исследованных кристаллов качественно можно понять в рамках зонной структуры HgCr₂Se₄, предложенной в [13].

В настоящее время признано, что электропроводность в образцах HgCr₂Se₄ обусловлена значительным отклонением от стехиометрии из-за вакансий как в ртутной, так и в селеновой подрешетках [4]. Эти вакансии образуют в запрещенной зоне донорные и акцепторные уровни или даже зону [13]. Переход к металлическому характеру проводимости *n*-типа и гигантские магниторезистивные эффекты около температуры Кюри Тс, аналогичные наблюдаемым в магнитных полупроводниках типа EuO и CdCr₂Se₄ [16,17], могут обыть объяснены локализацией электронов в примесных состояниях типа феррон [18]. По рентгеновским данным [4], в as growкристаллах HgCr₂Se₄ концентрация вакансий по Se (доноров) превышает концентрацию вакансий по Нg (акцепторов), т.е. должна наблюдаться проводимость *n*-типа. Дырочная проводимость может быть объяснена тем, что в парамагнитной области часть электронов с доноров (с вакансий по Se) идет на компенсацию акцепторов, а часть из них захватывается ионами Cr^{+3} . Известно [19,20], что в структуре шпинели электроны с вакансий по Se с тремя ближайшими ионами Cr+3 могут образовать примесный центр типа Cr⁺². Этот центр обладает тригональной симметрией и имеет особый спектр ферромагнитного резонанса (ФМР) [20]. Однако такой спектр наблюдался только в редких случаях [20,21]; он не обнаружен даже в отожженных в парах ртути образцах HgCr₂Se₄ [22]. Эти результаты можно объяснить тем, что донорный электрон в ферромагнитной области делокализован. Особенности спектров ФМР хромхалькогенидных шпинелей в [19] объясняются также при учете переноса заряда между ионами фрома в примесном центре.

Делокализация соответствует увеличению концентрации доноров, что вызывает изменение типа проводимости и увеличение σ около $T_C \cong 106$ К. Дно зоны проводимости из-за спинового расщепления опускается (в HgCr₂Se₄ примерно на 0.5 eV [10]), пересекает примесную зону, и происходит их гибридизация [13,23]: электрон с некоторой вероятностью может находиться в высокоподвижной (s-подобной) и низкоподвижной (в примесной) зоне. Степень гибридизации, определяемая взаимным расположением зоны проводимости и примесной зоны [13], в магнитных полупроводниках может легко управляться изменением температуры, напряженности внешнего магнитного и, как показывают эксперименты, электрического полей. С повышением температуры гибридизация уменьшается, чем объяснялось в [13] уменьшение подвижности μ носителей заряда HgCr₂Se₄ с повышением температуры (рис. 4). Аналогично могут быть объяснены зависимости подвижности носителей заряда от напряженности магнитного поля (рис. 4) и от условий отжига. В HgCr₂Se₄, как и в других магнитных полупроводниках, дно зоны проводимости в магнитном поле опускается [24], что приводит к увеличению доли s-состояния и соответственно к увеличению μ в магнитном поле. Отжиг в парах Нg залечивает вакансии по Hg и уменьшает концентрацию акцепторов, что приводит к уменьшению σ при комнатных температурах [7,11], к увеличению σ и к металлическому характеру проводимости в ферромагнитной области. При увеличении магнитного поля электропроводность наиболее сильно возрастает вблизи Т_С (рис. 1) из-за увеличения концентрации носителей заряда (рис. 4), по-видимому, вследствие распада ферронных состояний.

Таким образом, изменения ρ и R_0 от T и H HgCr₂Se₄ могут быть объяснены влиянием трех типов носителей заряда: дырок в валентной зоне, электронов в примесной зоне и зоне проводимости и их гибридизацией, сильно меняющихся около T_C .

Обнаруженные изменения $\rho(E)$ и $R_0(E)$ не могут быть объяснены джоулевым разогревом. Оценки разогрева образца в адиабатическом режиме из выражения $\Delta T = E^2 \tau / (\rho dc)$ при плотности d = 6.4 g/cm³ и теплоемкости $c = 0.1 \text{ J/g} \cdot \text{K}$ при 53 K [25] дают максимальную величину нагрева 1–2 К, в то время как изменения ρ от Е соответствуют повышению температуры на 15-25 К. Холловские исследования HgCr₂Se₄ в сильном электрическом поле [6,26] обычно обсуждались в модели с одним типом носителей заряда. В этом случае $n = 1/(e|R_0|)$, и для объяснения зависимостей $\rho(E)$ и $R_0(E)$ на рис. 2, 3 нужно предположить немонотонные и резкие изменения n и μ от E. По-видимому, немонотонные изменения R_0 от E (рис. 3), как и зависимости $R_0(T)$ (рис. 1), показывают, что свойства HgCr₂Se₄ в сильных электрических полях обусловлены появлением носителей заряда нескольких типов. Видно (рис. 2, 3), что изменения $\rho(E)$ происходят за счет уменьшения подвижности носителей заряда, а также их концентрации аналогично изменениям *n* и μ с возрастанием температуры (рис. 4).

Обнаруженная взаимосвязь между изменениями σ и R_0 от температуры и напряженности магнитного поля и изменениями σ и R_0 от напряженности электрического поля свидетельствует в пользу магнитной природы этих явлений. Результаты исследований $\rho(E)$ и $R_0(E)$ могут быть объяснены в рамках обсуждаемой модели при учете разогрева магнонов горячими носителями заряда [2]. В электрическом поле электроны в магнитном полупроводнике, как и в обычном, разогреваются. Разогрев электронов в HgCr₂Se₄ на \sim 20–30 K при $E \cong 1$ kV/cm был подтвержден измерениями СВЧ-шумовых температур [27]. Сталкиваясь с магнонами, носители заряда передают им свою энергию. Но в HgCr₂Se₄ магноны слабо связаны с фононами, так как температура Дебая $T_D \cong 300 \text{ K} [25]$ в несколько раз выше температуры Кюри Тс. Вследствие этого магнонам будет затруднительно передавать полученную от электронов энергию в термостат, и таким образом могут создаваться условия для разогрева магнонов в электрическом поле. Уменьшение намагниченности на несколько процентов в электрическом поле обнаружено при непосредственных измерениях намагниченности магнитных полупроводников [2,5].

Уменьшение намагниченности при разогреве магнонов в электрическом поле может привести к подъему дна зоны проводимости и к увеличению энергетической щели, к локализации электронов в примесном состоянии типа феррон, которые приводят к увеличению доли проводимости в примесной зоне. Вследствие этого наблюдаются аналогичные температурным изменения ρ и R от E.

Видно (рис. 2, 3), что *n* и μ начинают заметно зависеть от *E* при превышении критического значения $E_c \simeq 0.5$ kV/cm. Эти результаты оценки E_c согласуются с предсказаниями теории разогрева магнонов [2,3] и с характером изменения температуры электронов от напряженности электрического поля [27]. Но, как следует из рис. 1–3, зависимостям ρ и R_0 от *E* не соответствуют одинаковые значения температур, определенные из их температурных зависимостей. Это можно объяснить тем, что в электрическом поле меняется только часть проводимости, зависящая от намагниченности. Иссле-

дования намагниченности в электрическом поле [5] на аналогичных образцах HgCr₂Se₄ показали уменьшение намагниченности порядка 1%. При разогреве магнонов на 10–15 К намагниченность HgCr₂Se₄, по ее температурной зависимости [6], должна уменьшиться на 3–6%. Эти данные можно объяснить тем, что намагниченность в электрическом поле, как показывают эксперименты [3,5,15], устанавливается за значительно большее время $\sim (2 \cdot 10^{-5} - 10^{-3})$ s, чем длительность импульса $\sim 10^{-6}$ s.

Таким образом, изменения электрических свойств HgCr₂Se₄ в сильном электрическом поле могут быть объяснены изменением электронного спектра при разогреве магнонов горячими носителями заряда. Можно ожидать в электрическом поле увеличения энергетической щели, которое может быть обнаружено, например, оптическими методами.

Выражаем благодарность Ю.Г. Арапову, Г.Л. Штрапенину, Н.А. Городилову за содействие и помощь при исследованиях в сильных магнитных полях.

Работа выполнена при финансовой поддержке по проекту № 95-2.10 Государственной научно-технической программы "Актуальные направления в физике конденсированных сред".

Список литературы

- A.A. Samokhvalov, N.I. Solin, N.A. Vliglin, V.A. Kostylev, V.V. Osipov, V.S. Babushkin. Phys. Stat. Sol. (b) 169, 1, K93 (1992).
- [2] И.Я. Коренблит, Б.Г. Танхилевич, ФТТ 18, 1, 62 (1976).
- [3] I.Ya. Korenblit, A.A. Samokhvalov, V.V. Osipov. Soc. Sci. Rev. A. Phys. 8, 1, 457 (1987).
- [4] Н.М. Чеботаев, М.И. Симонова, Т.И. Арбузова, Б.А. Гижевский. Изв. АН СССР. Неорган. материалы 21, 9, 1468 (1985).
- [5] Н.А. Виглин, В.В. Осипов, А.А. Самохвалов. ФТТ 33, 9, 2695 (1991).
- [6] Н.И. Солин, Б.Н. Филиппов, И.Ю. Шумилов, А.А. Самохвалов. ФТТ 35, 6, 1613 (1993).
- [7] Н.И. Солин, А.А. Самохвалов, С.В. Наумов. ФТТ 37, 7, 2100 (1995).
- [8] В.В. Осипов, В.А. Костылев. ФТТ 29, 9, 2809 (1987).
- [9] L. Goldstein, P. Gibart, A. Selmi. J. Appl. Phys. 49, 3, 1474 (1978).
- [10] A. Selmi, A. Mauger, M. Heritier. J. Magn. Magn. Mater. 66, 1, 295 (1987).
- [11] Б.А. Гижевский, А.А. Самохвалов, В.А. Костылев, Н.Н. Лошкарева, Ю.П. Сухоруков, Т.И. Арбузова, Н.М. Чеботаев. ФТТ 26, 9, 2647 (1984).
- [12] V.A. Kostylev, B.A. Gizhevskii, A.A. Samokhvalov, M.I. Auslender, N.G. Bebenin. Phys. Stat. Sol. (b) 158, 2, 307 (1990).
- [13] В.Г. Веселаго, К.М. Голант, И.С. Ковалева, И.М. Юрин. ЖЭТФ 86, 5, 1857 (1984).
- [14] К.М. Голант, А.В. Филатов. Краткие сообщения по физике 5, *1*, 9 (1981).

- [15] А. Гальдикас, И. Матуленене, И.С. Ковалева. ФТТ 26, 10, 2906 (1984).
- [16] Y. Shapira, S. Foner, T.B. Reed. Phys. Rev. B8, 5, 2299 (1973).
- [17] К.П. Белов, Л.И. Королева, Л.Н. Товмасян. ЖЭТФ 73, 6, 2309 (1977).
- [18] Э.Л. Нагаев. Физика магнитных полупроводников. М. (1979). 432 с.
- [19] М.А. Иванов, В.Я. Митрофанов, Л.Д. Фальковская, А.Я. Фишман. ФТТ 35, 7, 2025 (1993).
- [20] B. Hoekstra, var Stapele. Phys. Stat. Sol. (b) 55, 2, 607 (1973).
- [21] Н.И. Солин, Л.Д. Фальковская, А.А. Самохвалов. ФТТ 36, 10, 3090 (1994).
- [22] Л.Г. Никифоров, Л.Я. Пасенко, Л.М. Эмирян, А.Г. Гуревич. ФТТ **27**, *1*, 229 (1985).
- [23] М.Ш. Ерухимов, С.Г. Овчинников. ФТТ 21, 2, 351 (1979).
- [24] И.К. Больных, Г.Н. Север. ФТТ 37, 2, 570 (1995); И.К. Больных, А.В. Головин, Г.Н. Север. Вестн. МГУ. Сер. 3. Физика. Астрономия 36, 2, 100 (1995).
- [25] М.А. Иванов, Н.И. Коуров, Х. Медге, М.И. Симонова, Л.Д. Фальковская, А.Я. Фишман. ФТТ 28, 5, 1585 (1986).
- [26] В.А. Костылев, А.А. Самохвалов. ФТТ 34, 1, 296 (1992).
- [27] А. Гальдикас, И. Матуленене, А.А. Самохвалов, В.В. Осипов. ФТТ 25, 7, 1999 (1983).