

Магнитная восприимчивость резонансных донорных примесей переходных элементов в полупроводниках

В.И. Окулов, Г.А. Альшанский, В.Л. Константинов, А.В. Королев,
Э.А. Нейфельд, Л.Д. Сабирзянова

Институт физики металлов УрО РАН, ул. С. Ковалевской, 18, г. Екатеринбург, 620219, Россия
E-mail: okulov@imp.uran.ru

Е.А. Памятных

Уральский государственный университет, пр. Ленина, 51, г. Екатеринбург, 620083, Россия

С.Ю. Паранчич

Черновицкий национальный университет, ул. Коцюбинского, 2, г. Черновцы, 58012, Украина

Статья поступила в редакцию 16 декабря 2003 г.

Показано, что при резонансном рассеянии электронов на донорных примесях переходных элементов в полупроводниках возникает вклад в спиновую восприимчивость от локализованной на примесях электронной плотности. Связанная с ним константа Кюри имеет необычную зависимость от концентрации примесей. Получено выражение для спиновой восприимчивости резонансно рассеивающихся электронов в рамках подхода Фриделя. Экспериментальные данные, полученные на селениде ртути с примесями железа, подтвердили теоретические результаты и позволили определить эффективный спин резонансного состояния.

Показано, що при резонансному розсіюванні електронів на донорних домішках перехідних елементів у напівпровідниках виникає внесок в спінову сприйнятливості від локалізованої на домішках електронної густини. Пов'язана з ним константа Кюрі має незвичайну залежність від концентрації домішок. Отримано вираз для спінової сприйнятливості електронів, що резонансно розсіюються, в рамках підходу Фріделя. Експериментальні дані, отримані на селеніді ртуті з домішками заліза, підтвердили теоретичні результати та дозволили визначити ефективний спин резонансного стану.

PACS: 72.10.Fk, 72.20.Dp, 72.80.Ey

Примеси переходных элементов в полупроводниках при малой концентрации могут обладать донорными уровнями энергии, попадающими в полосу проводимости. Это проявляется в определенных особенностях поведения подвижности электронов, которые характерны для бесщелевых полупроводников. Большое внимание в связи с наблюдением таких эффектов привлекал селенид ртути с примесями железа, результаты исследования которого отражены в обзорных статьях [1,2]. Происхождение возникающих особенностей обусловлено тем, что взаимодействие электронов проводимости с примесными ионами при энергиях, близких к энергии до-

норного уровня ϵ_d , имеет резонансный характер. Резонансные явления при низких температурах становятся заметными, когда с ростом концентрации примесей энергия Ферми достигает энергии ϵ_d . При дальнейшем росте концентрации примесей энергия Ферми и концентрация электронов стабилизируются, т.е. почти не изменяются с ростом числа примесей. Именно в области стабилизации концентрации наблюдаются исследованные аномалии подвижности электронов — максимум в концентрационной зависимости и характерная зависимость от температуры [1,2]. Для объяснения возрастания подвижности с ростом концентрации примесей при известном факте резонансного рассеяния, подавляющего под-

вижность, широко использовали модель, основанную на предположении об упорядочении примесных ионов [3]. Однако в работе [4] показано, что концентрационный максимум подвижности может быть объяснен в рамках известной теории подвижности при рассеянии на ионах, если учесть, что в условиях стабилизации концентрации электронов эффективный заряд каждого из ионов уменьшается с ростом их числа. Применение общего подхода, основанного на теории резонансного рассеяния и правиле сумм Фриделя [5], позволяет просто объяснить наблюдаемые концентрационные и температурные аномалии подвижности [6].

В разработке моделей, позволяющих получить согласованное описание свидетельств взаимодействия электронов с примесями переходных элементов, существенное значение имеет изучение магнитной восприимчивости системы примесных спинов. Для селенида ртути с примесями железа был получен большой объем экспериментальных данных по восприимчивости, однако теоретический анализ ряда наблюдавшихся закономерностей в достаточной мере не проведен. В частности, не было дано количественное описание обнаруженной необычной концентрационной зависимости константы Кюри [4,7]. В связи с этим оставалась актуальной задача теоретического рассмотрения восприимчивости локализованных спинов резонансных донорных примесей. В настоящем сообщении изложено простое решение этой задачи в рамках теории резонансного рассеяния и подхода Фриделя. Приведены полученные нами экспериментальные данные по температурной зависимости восприимчивости локализованных моментов в селениде ртути с примесями железа и показано их соответствие изложенным теоретическим предсказаниям с определенными значениями параметров, согласующимися с существующими представлениями. Обсуждаются также имеющиеся данные по полевой зависимости и квантовым осцилляциям восприимчивости в связи с поведением амплитуд осцилляций де Гааза—ван Альфена и Шубникова—де Гааза.

Рассмотрим прежде всего влияние резонансного рассеяния электронов на плотность состояний с данным значением энергии ε . Если однократно ионизованные донорные примеси с концентрацией n_i имеют резонансную энергию ε_d , то резонансу отвечает вклад в плотность состояний в виде функции

$$n_i g(\varepsilon) = \frac{n_i \Delta}{\pi} [(\varepsilon - \varepsilon_d)^2 + \Delta^2]^{-1}, \quad (1)$$

где Δ — ширина резонанса, малая по сравнению с ε_d . Эта резонансная функция входит в выражение для спиновой восприимчивости локализованной на

примесях электронной плотности через интеграл, который мы введем следующим образом:

$$\eta = -2n_i \int d\varepsilon g(\varepsilon) \frac{df(\varepsilon)}{d\varepsilon} = 2n_i \int \frac{d\varepsilon g(\varepsilon)}{4kT \operatorname{ch}^2 [(\varepsilon - \varepsilon_F)/2kT]}, \quad (2)$$

где $f(\varepsilon)$ — функция Ферми, ε_F — энергия Ферми, T — температура, k — постоянная Больцмана. Интеграл в формуле (2) следует распространить на интервал шириной порядка Δ в окрестности энергии ε_d , в котором остается справедливой формула (1). Характер зависимостей величины η от температуры и концентрации примесей определяется соотношениями энергий kT и Δ , ε_F и ε_d . Будем считать, что все электроны возникают от рассматриваемых доноров и при этом их концентрация такова, что энергия Ферми превышает ε_d . Тогда при дальнейшем росте концентрации доноров энергия Ферми мало изменяется и концентрация электронов проводимости $n_e(\varepsilon_F)$ остается близкой к значению $n_0 = n_e(\varepsilon_d)$. Именно при такой концентрации электронная плотность наряду с долей проводящих электронов содержит рассматриваемую часть, локализованную на резонансных донорных примесях, вклад которой в электронную концентрацию равен

$$n_i z = n_i - n_0, \quad (3)$$

где z — заселенность локализованных состояний:

$$z = \int d\varepsilon g(\varepsilon) f(\varepsilon). \quad (4)$$

В основном состоянии величину z можно записать в следующем виде:

$$z = \frac{1}{2} + \frac{1}{\pi} \operatorname{arctg} \left(\frac{\varepsilon_F - \varepsilon_d}{\Delta} \right), \quad T = 0. \quad (5)$$

Равенство (3) тогда является уравнением для определения энергии Ферми в резонансном интервале $|\varepsilon_F - \varepsilon_d| \leq \Delta$. При этом легко найти плотность состояний с энергией Ферми, и величина η оказывается равной

$$\eta = 2n_i g(\varepsilon_F) = \frac{2n_i}{\pi \Delta} \sin^2 \left(\frac{\pi n_0}{n_i} \right), \quad T = 0. \quad (6)$$

Если же температура существенно больше, чем Δ/k , то в функции Ферми, входящей в выражения (2) и (4), можно взять предельные значения экспонент и тогда получим

$$\eta = zn_i / kT = (n_i - n_0) / kT, \quad T \gg \Delta/k. \quad (7)$$

Формулы (6) и (7) дают основу для простого анализа спиновой восприимчивости донорных примесей.

Примем в качестве исходной хорошо известную форму выражения для спиновой восприимчивости электронов, полученную упрощением результата теории электронной жидкости, сохраняющим на качественном уровне описание роли межэлектронного взаимодействия. Рассматривая в соответствии с изложенным выше только восприимчивость локализованных электронов, запишем ее в виде

$$\chi_d = \mu^2 \eta / (1 + \psi \eta) , \quad (8)$$

где параметр ψ описывает обменное взаимодействие электронов в локализованных на примесях состояниях, а в μ^2 входят факторы, отражающие роль взаимодействия между электронами в локализованном и проводящем состояниях, а также отличие эффективного спина локализованного состояния от спина свободного электрона. Если ионизованный донор не имеет спина ($S = 0$), то для μ^2 справедлива простая формула:

$$\mu^2 = \mu_0^2 (1 + \psi_{ed}) = 4\mu_0^2 (\langle s^2 \rangle / 3) (1 + \psi_{ed}) , \quad S = 0 , \quad (9)$$

где μ_0 — магнетон Бора, ψ_{ed} — константа взаимодействия, $\langle s^2 \rangle = s(s + 1) = 3/4$. Для более актуального случая, когда спин иона S отличен от нуля, обобщим второе выражение в равенстве (9), вводя спин локализованного состояния s_d :

$$\mu^2 = 4 \mu_0^2 (\langle s_d^2 \rangle / 3) (1 + \psi_{ed}) , \quad S > 0 . \quad (10)$$

Величина $\langle s_d^2 \rangle$ является параметром полностью заполненного локализованного состояния, которое для примеси в целом близко к состоянию неионизованного донора. При этом если наряду со спином ионизованной примеси S известен и спин неионизованной S_a , то можно определить s_d , принимая некоторое правило сложения. Например, при $S_a < S$, полагаем

$$\langle s_d^2 \rangle = \langle S^2 \rangle - \langle S_a^2 \rangle = S(S + 1) - S_a(S_a + 1) . \quad (11)$$

Тогда при малом ψ_{ed} величина μ^2 будет известна довольно точно. В более сложных ситуациях, когда изложенный способ определения эффективного момента неприменим, он сам как целое остается феноменологическим параметром.

Приведенные выше выражения (6) и (7) позволяют записать следующие формулы для восприимчивости при низких и высоких температурах:

$$\chi_d = \frac{\mu^2 n_i \sin^2 (\pi n_0 / n_i)}{\Delta_1 + \psi n_i \sin^2 (\pi n_0 / n_i)} , \quad T \ll \Delta / k , \quad (12)$$

$$\chi_d = \frac{\mu^2 (n_i - n_0)}{kT + \psi (n_i - n_0)} , \quad T \gg \Delta / k , \quad (13)$$

где $\Delta_1 = \pi \Delta / 2$. Основная качественная особенность восприимчивости, описываемой этими формулами, состоит в характерных необычных концентрационных зависимостях, отражающих стабилизацию электронной концентрации при резонансном рассеянии на донорных примесях. Она проявляется в слагаемых, содержащих предельную концентрацию n_0 как в восприимчивости без учета взаимодействия, так и в параметрах, характеризующих обменное взаимодействие в локализованных состояниях. Существенное значение имеет также полученное в теории подтверждение того, что восприимчивость резонансных донорных состояний при высоких температурах подчиняется закону Кюри — Вейсса. Рассматриваемая восприимчивость χ_d входит в полную магнитную восприимчивость кристалла, которая содержит вклад локализованных моментов ионизованных примесей χ_d^0 , также подчиняющийся закону Кюри, и слабо зависящую от температуры восприимчивость матрицы χ^0 .

Экспериментальные данные, которые обсуждаются ниже с привлечением изложенных теоретических результатов, получены нами на кристаллах селенида ртути с примесями железа. Часть данных предварительно сообщалась в докладах [6,8] и статье [4], в этих публикациях приведены сведения о методике экспериментов. Измерения проведены на наборе образцов с концентрациями железа в интервале от 10^{18} до 10^{21} см⁻³. На том же наборе образцов исследованы концентрационные и температурные зависимости электронной подвижности и показано, что наблюдаемые их аномалии хорошо согласуются с теоретическими результатами, полученными на основе теории резонансного рассеяния и подхода Фриделя. В настоящем сообщении мы также сосредоточим внимание на анализе тех экспериментальных данных, которые позволяют проверить выводы упомянутой теории. Более всего в этом отношении представляют интерес результаты, относящиеся к температурной зависимости восприимчивости локализованных моментов. На всех изученных образцах наблюдались хорошо выделяемые вклады в восприимчивость от примесей железа, температурные зависимости которых подчиняются закону Кюри (рис. 1). Детальная обработка данных по концентрационной зависимости константы Кюри (рис. 2) в восприимчивости $\chi_d^0 + \chi_d$ показала, что

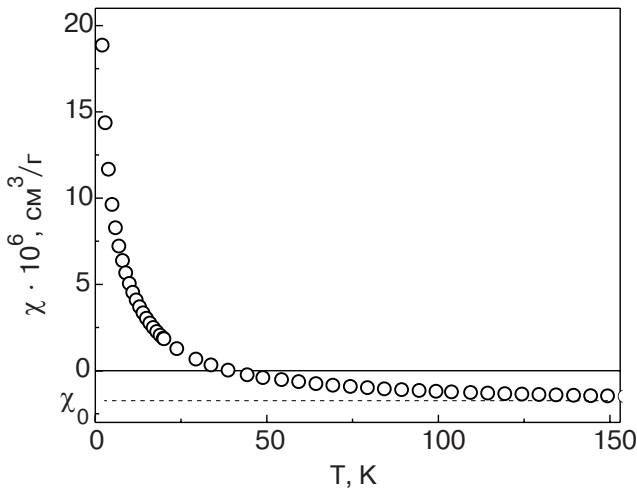


Рис. 1. Температурная зависимость магнитной восприимчивости селенида ртути с примесями железа. Концентрация примесей $1 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$.

они хорошо укладываются на зависимость следующего вида:

$$Cn_{\text{Fe}} = C_0 n_{\text{Fe}} + \delta C(n_{\text{Fe}} - n_0), \quad (14)$$

где n_{Fe} — концентрация примесей железа, n_0 — введенная выше предельная концентрация электронов проводимости, определенная в экспериментах по подвижности, $C_0 = 4\mu_0^2 S(S+1)n_{\text{Fe}}/3k$ — константа Кюри, отвечающая спину $S = 5/2$, а $C_0 + \delta C$ — константа Кюри для спина 2.1. Нетрудно убедиться, что зависимость (14) отвечает формуле (13) с учетом равенств (10), (11) при значениях спина $S = 5/2$ и $S_a = 2$ и константы $\psi_{ed} = 0,1$. Известно, что донорный ион железа имеет спин $5/2$ и примесь железа может иметь спин 2. Также разумным является найденное значение эффективного магнитного момента. Поэтому можно заключить, что один из основных выводов изложенной теории вполне согласуется с экспериментальными данными. Что касается температурной зависимости вида $(T + \theta)^{-1}$, предсказываемой теорией, то результаты обработки имеющихся данных показывают, что заметные значения θ могут быть выявлены только для больших концентраций примесей, превышающих резонансное значение на один-два порядка; этот результат согласуется с данными работы [7]. Применение предложенной нами теории для таких концентраций вряд ли может быть обосновано.

Существенное значение для развития представлений об эффектах резонансного рассеяния электронов могут иметь данные экспериментов по квантовым осцилляциям восприимчивости и проводимости в магнитном поле. Наши исследования эффекта де Гааза—ван Альфена, первые результаты которых сообщались ранее [8], посвящены установлению

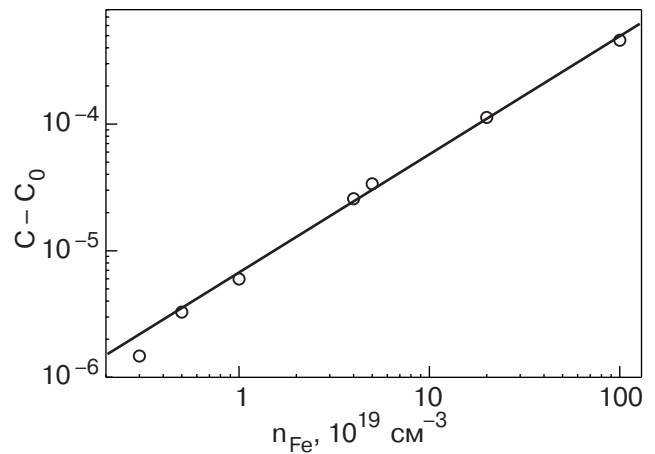


Рис. 2. Зависимость от концентрации примесей железа n_{Fe} константы Кюри в магнитной восприимчивости локализованных моментов на примесях железа в селениде ртути. C_0 — значение константы Кюри при $n_{\text{Fe}} = n_0$.

корреляции концентрационных зависимостей амплитуд осцилляций магнитосопротивления и восприимчивости. Установлено, что температура Дингла квантовых осцилляций имеет минимум в той же области концентраций, в которой электронная подвижность имеет максимум. При этом значения температуры Дингла в осцилляциях восприимчивости значительно меньше. Однако для получения более полных количественных результатов в этом круге проблем необходимо детальное исследование формы осцилляций с учетом спинового расщепления и других факторов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант № 03-02-16246, и Российско-американской программы BRNE, грант ЕК-005-00 (REC-005).

1. Z. Wilamowski, *Acta Phys. Polonica* **A77**, 133 (1990).
2. И.М. Цидильковский, *УФН* **35**, 85 (1992).
3. J. Mycielski, *Solid State Commun.* **60**, 165 (1986).
4. G.A. Alshanskii, V.L. Konstantinov, A.V. Korolyov, E.A. Neifeld, V.I. Okulov, S.U. Paranchich, and L.D. Sabirzyanova, *Phys. Met. Metallogr.* **93**, Suppl. 1, 142 (2002).
5. J. Friedel, *Nuovo Cimento, Suppl.* **2**, 287 (1958).
6. В.И. Окулов, А.В. Королев, Э.А. Нейфельд, Л.Д. Сабирзянова, С.Ю. Паранчич, К.С. Редкина, *E-MRS Fall Meeting 2002, Symposium G: Solid Solution of the II-VI Compound-Growth, Characterization and Applications*, Zakopane, Poland (2002), Abstr. 50.
7. A. Lewicki, Z. Tarnawski, and A. Mycielski, *Acta Phys. Polonica* **A67**, 357 (1985).
8. В.Л. Константинов, А.В. Королев, Э.А. Нейфельд, В.И. Окулов, С.Ю. Паранчич, Л.Д. Сабирзянова, Г.А. Альшанский, *XXXI Собрание по физике низких температур, Тезисы докладов*, Москва (1998), с. 56.

Magnetic susceptibility of resonance donor
impurities of transition elements in
semiconductors

V.I. Okulov, G.A. Alshanskii, V.L. Konstantinov,
A.V. Korolyov, E.A. Neifeld, L.D. Sabirzyanova,
E.A. Pamyatnykh, and S.U. Paranchich

It is shown that on resonance scattering of
electrons by donor impurities in semiconductors
there is a contribution to the spin susceptibility

from the electron density localized at the impurities. The related Curie constant has an unusual dependence on impurity concentration. An expression for spin susceptibility of resonant electrons has been obtained in the framework of Friedel's approach. The above results of the theory were verified by the experimental data for mercury selenide with iron impurities. The effective spin of the resonance state has been found.