## 稀磁半导体 Hg<sub>0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 磁化强度 及磁化率的研究\*

#### 王泽温\* 介万奇

(西北工业大学材料学院,西安 710012) (2006年8月31日收到 2006年10月18日收到修改稿)

利用 MPMS-(T magnetic property measurement system)型超导量子磁强计对垂直布里奇曼法生长的 H<sub>g0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 晶 片磁化强度变化规律进行了测量.试验采用了两种不同的外场和冷却条件.首先在 5 K 恒温下, - 5200 到5200 kA/m 范围内改变磁场强度进行了测定.然后维持 800 kA/m 恒定磁场,分别在有场冷却和无场冷却条件下,从 5 到300 K 范围内改变温度,研究了变温条件下的磁化特性.并采用分子场近似模型,用类布里渊函数,最小二乘法对磁化强 度随磁场强度变化的实验结果进行拟合和分析,结果表明,Mn<sup>2+</sup>离子之间存在反铁磁相互作用.磁化率和温度关系 分析表明.在测试范围内 Hg<sub>0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 是单一的顺磁相,在高温区磁化率和温度服从居里-万斯定律,呈线性关系, 低于 40 K 时,磁化率和温度的关系偏离居里-万斯定律,表现出顺磁增强现象.

关键词:Hg<sub>0.89</sub>Mn<sub>0.11</sub>Te,磁化强度,磁化率,类布里渊函数 PACC:7590,7530C,7520,7530E

### 1.引 言

 $H_{g_{1-x}}Mn_{x}Te$  是由磁性离子  $Mn^{2+}$  替代闪锌结构 的二元化合物 HgTe 晶格中的  $Hg^{2+}$  所形成的一种新 型稀磁半导体材料.零磁场时 , $H_{g_{1-x}}Mn_{x}Te$  的电子 能带结构及其半导体性质(包括禁带宽度、电子及空 穴迁移率、载流子浓度等 )与  $H_{g_{1-x}}Cd_{x}Te$  十分相  $(l^{12}]$ .在磁场中 ,由于磁性离子  $Mn^{2+}$ 的 3d<sup>5</sup> 电子与 能带中迁移载流子(电子或孔穴)间自旋-自旋交换 互相作用<sup>[3,4]</sup> ,使得  $H_{g_{1-x}}Mn_{x}Te$  晶体产生了一系列 新的光学、磁光及运输现象 ,例如有效因子 g 增 大<sup>[5,6]</sup> 磁场诱发的导带和价带重叠<sup>[3]</sup>,巨法拉第旋 转<sup>[7]</sup>以及巨负磁致磁阻<sup>[8]</sup>等.而材料的磁化强度和 磁化率的变化规律又是深入研究其电学性质、量子 运输和磁光效应等物理现象的基础<sup>[9-12]</sup>.

H<sub>g0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 晶体可用来制作 8—14 μm 波段 的红外光电探测器<sup>13,14]</sup>,近年来对此成分的 Hg<sub>1-x</sub> Mn<sub>x</sub> Te晶体的研究引起了广泛关注.而有关 Hg<sub>0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 的磁化率和磁化强度的报道却很少, 从查阅的资料来看只有 Nagata 等人<sup>[15]</sup>在 1200 A/m 的弱场条件下,对 5 到80 K范围对 Hg<sub>0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 的 磁化率进行了研究.

本文对垂直布里奇曼法(vertical Bridgman method)生长的  $H_{0.89}$   $Mn_{0.11}$  Te 试样,采用 MPMS-7 (magnetic property measurement system)型超导量子磁强计在不同温度和外加磁场条件下,对其磁化强度变化规律进行了测量.并利用类布里渊函数及居里-万斯定律对实验结果进行理论分析和拟合.

#### 2. 实 验

实验所用  $H_{g_{1-x}}Mn_x$  Te 试样是用垂直布里奇曼 法生长的.试样组分用电子探针进行了测量,证明其 成分 x = 0.11.利用 MPMS-7 型超导量子磁强计首先 对试 样在 5 K 恒定 温度下,磁场从 – 5200 到 5200 kA/m变化时的磁化强度进行了测量.然后在 800 kA/m 的恒定磁场下,对无场冷却和有场冷却条 件下温度从 5 到300 K变化时的磁化强度分别进行 了测量.无场冷却测量是指在不加外在磁场的条件 下先将试样缓慢冷却至测试温度,然后再施加磁场

<sup>\*</sup> 国家自然科学基金重点项目(批准号 50336040)资助的课题.

<sup>†</sup> E-mail:wsmengyu@hotmail.com

进行测量,有场冷却测量则是指先施加外在磁场,然 后再降低试样温度.所用试样重20—40 mg.

#### 3. 结果与讨论

过渡族  $Mn^{2+}$ 离子未满壳层电子为 3d 态 ,3d 壳 层电子靠近最外层 ,与其他元素形成化合物晶体时 , 核外的电子除了受到核和原子(离子 )中其他电子的 作用外 ,还受到近邻格点的核和电子的库仑作用 ,这 种附加的非均匀电场的作用称为晶场作用 .由于这 种强晶场的作用 ,使得  $Mn^{2+}$ 离子的电子自旋与轨道 耦合解脱 .这时电子轨道态能量简并完全解除 ,总角 动量量子数 J 不再表征这些能态 ,形成电子轨道角 动量"冻结 ( 或称轨道角动量猝灭 )平均轨道角动量 为零 , $Mn^{2+}$  处于 L = 0 态 ,其磁性与轨道角动量无 关 ,而主要来源于电子的自旋磁距 .  $Mn^{2+}$ 的有效磁 子数也主要是电子自旋磁矩的贡献 .

当  $Mn^{2+}$  离子含量较低( $0 < x < 5 \times 10^{-3}$ )时,各个  $Mn^{2+}$ 离子可以被假定是孤立的,通常可通过引入  $Mn^{2+}$ 离子的总自旋 *S* 在磁场 *z* 方向的热平均值 *S*<sub>z</sub> 来描述局域顺磁  $Mn^{2+}$ 离子与迁移载流子间的自旋交互作用. *S*<sub>z</sub> 正比于宏观体磁化强度 *M*,如 (1)武所示<sup>[16]</sup>:

 $M = -N_{sg_{Mn}}\mu_{B} S_{z}$ , (1) 式中  $N_{s} \in Mn^{2+}$ 磁性离子数/g, $g_{Mn} = 2 \in H = 2$  度 子, $\mu_{B} \in H = 2$  定 明 = 2 定 明 = 2 因 了, $\mu_{B} \in Mn^{2+}$ 磁性离子,为 9.27 × 10<sup>-24</sup> J/T. 当磁性离子 浓度 x 很低时,可认为无序分布在晶格格点上的  $Mn^{2+}$ 离子间没有相互作用,根据分子平均场理论,  $S_{z}$  可由下式给出:

$$S_{z} = -SB_{s}\left(\frac{g_{\mathrm{Mn}}\mu_{\mathrm{B}}SB}{\kappa_{\mathrm{B}}T}\right) , \qquad (2)$$

式中 ,S = 5/2 ,为  $Mn^{2+}$  离子的总自旋 , $k_B$  是玻尔兹 曼常数 ,为 1.38 × 10<sup>-23</sup> J/T ,B 为磁场强度 ,T 是温 度 , $B_s(Z)$ 为布里渊函数 ,可表示为

$$B_{s}(Z) = \frac{2S}{2S+1} \operatorname{coth}\left(\frac{2S}{2S+1}Z\right) - \frac{1}{2S} \operatorname{coth}\left(\frac{1}{2S}Z\right) ,$$
(3)

当 Mn<sup>2+</sup>离子含量较高时,磁性离子不再是孤立 的,必须考虑它们之间的相互作用,同时随着 Mn<sup>2+</sup> 离子浓度增加,Mn<sup>2+</sup>离子将结成更大尺寸的反铁磁 束缚的集团.在这种情况下,可采用经验的类布里渊 函数来替代<sup>161</sup>,其表示如下:

$$S_{z} = -S_{0}B_{5/2}\left(\frac{5}{2}\frac{g_{\rm Mn}\mu_{\rm B}B}{2\kappa(T+T_{0})}\right) , \quad (4)$$

式中  $,S_0$  是单位有效自旋  $,T_{eff} = T + T_0$  为有效温 度 ,与磁性  $Mn^{2+}$  离子浓度相关  $.S_0$  和  $T_0$  是拟合参 数 ,根据拟合出的  $S_0$  和  $T_0$  大小 ,可以判断  $Mn^{2+}$  离 子之间是否存在反铁磁相互作用以及反铁磁相互作 用的强烈程度 ,当  $S_0 < 5/2$  , $T_0 > 0$  ,就表明  $Mn^{2+}$  离子 之间存在反铁磁相互作用  $,S_0$  越小 , $T_0$  越大 , $Mn^{2+}$ 离子之间的反铁磁相互作用就越强 . 此时 ,磁场强 度为

 $M(B,T) = C_1 B_s(Z) + C_2$ , (5) 式中, $C_1 = S_0 N_s g_{M_n} \mu_B$ , $C_2$ 为拟合参数,它表示测量 中磁场的微小不确定量.

图 1 为 Hg<sub>0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 试样在 5 K 时磁化强度 *M* 与磁场强度 *B* 的关系曲线,由图可知,试样呈现出顺磁特性.即试样在未加磁场时,由于热运动的作用,Mn<sup>2+</sup>离子的固有磁矩是无规则的,不显示磁性. 在外加磁场作用下,原子磁矩有沿着磁场方向排列的趋势而表现出弱的磁性.由图 1 还可以看出,在 - 800到800 kA/m范围内,试样的磁化强度随着磁场强度的增大,呈线形增加,而当磁场强度绝对值进一步增大时,磁化强度的增大幅度变小,开始偏离线形关系.



图 1 Hg<sub>0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 的磁化强度与磁场强度(-5200 kA/m 到 5200 kA/m )的关系曲线

图 1 中的点为实验结果,曲线为根据(5)式拟合的理论曲线.拟合参数  $T_0 = 7.55 > 0$ , $S_0 = 0.83$ ,比 S = 5/2值小的很多,说明  $Mn^{2+}$ 离子之间形成了强的 反铁磁序排列的集团,从而使有效磁矩大大降低.

在高温或低磁场强度下 ,即  $Z \ll 1$  ,或  $g_{Mn} S \mu_B B / \kappa_B (T + T_0) \ll 1$  时 ,

$$B_{s}(Z) = \frac{S+1}{S}\frac{Z}{3}, \qquad (6)$$

将它代入(5) 武得到

 $M = BN_{eff}g_{Mn}^{2}\mu_{B}^{2}S(S + 1)/3\kappa_{B}(T + T_{0}), (7)$ 式中  $N_{eff}$ 为有效  $Mn^{2+}$ 离子数/g. 这说明在高温弱场 情况下 ,Hg<sub>0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 的磁化强度与外磁场成正比 , 与图 1 磁场强度绝对值小于 800 kA/m 时所示结果 一致. 当温度较低 ,但外场较强 ,即  $Z \gg 1$  , $Z \to \infty$  时 , 由于  $\cot h \frac{2S}{2S+1}Z \to 1$  , $\cot h \frac{Z}{2S} \to 1$  , $B_{s}(Z) \to \frac{2S+1}{2S} - \frac{1}{2S} \to 1$ .将这些参数代入(5)式 得到  $M = N_{sg_{Mn}}\mu_{B}S$ .说 明所有原子的磁矩都趋于外场方向 ,即达到饱和 状态.

由  $M = \chi B$  可以得到磁化率  $\chi$  图 2 是在800 kA/m 恒磁场下,磁化率倒数与温度分别在有场冷却和无 场冷却时的关系曲线,温度变化范围为 5—300 K. 两者完全吻合,并没有像其他 A<sub>1-x</sub> Mn<sub>x</sub> B 合金那样, 冷却条件不同时,磁化率表现不同的现象<sup>[17]</sup>,说明 在测试条件下, $H_{g_{0.89}}$  Mn<sub>0.11</sub> Te 处于单一的顺磁态.图 2 中的直线是根据居里-万斯定律与实验数据拟合 的结果.图 3 是图 2 中温度从 5 到40 K变化时的放 大图,图中的点为实验数据,曲线是根据最小二乘法 二次拟合出的曲线.从图 2 和图 3 中可以看出, T > 40 K时,试样的磁化率倒数和温度成线性关系, 而 T < 40 K时,却为向下弯曲的二次曲线形状.表 明在 T > 40 K的高温范围内,试样的磁化率和温度 服从居里-万斯定律:

$$\chi = \alpha(x)[T + \theta(x)], \quad (8)$$
  
其中 ,  $\alpha(x)$ 是每 g居里常数 ,可表示为

 $Q(x) = N_{\rm eff} g_{\rm Mn}^2 \mu_{\rm B}^2 S(S+1)/3\kappa_{\rm B} , \qquad (9)$ 

$$\theta(x) = 2xS(S+1)\sum_{p}Z_{p}J_{p}/3\kappa_{\rm B}$$
, (10)

其中  $J_p$  是  $Mn^{2+}$  离子第 P 个相邻间交换积分  $Z_p$  是 第 P 个配位球中的阳离子数. 如果只考虑最近邻  $Mn^{2+}$  离子间的相互作用 ,  $\sum_{p} Z_p J_p$  可近似为  $Z_1 J_1$  , 那么

$$\theta(x) = 2xS(S+1)J_1Z_1/3k_{\rm P}$$
. (11)

根据高温部分的拟合参数 C(x),结合(9)式可 以算出  $N_{\text{eff}} = 1.35 \times 10^{20} \text{g}^{-1} < N_s = 1.73 \times 10^{20} \text{g}^{-1}$ ,这 表明高温时  $\text{Mn}^{2+}$ 离子之间存在着弱的反铁磁相互 作用.

低温时磁化率的温度关系明显偏离居里-万斯 定律 表现出顺磁增强.这说明在低温下形成更多的 反铁磁束缚集团,使得晶体内有效的 Mn<sup>2+</sup>磁性离子 浓度进一步降低.对于这种顺磁增强,目前还没有定 量的解析表达式,定性的可以用磁化率的布里渊函 数展开式中的高次项来说明,此时,磁化率倒数可表 示如下<sup>[9]</sup>:

$$\chi^{-1} = \frac{1}{O(x)} \left[ T - \theta(x) + \frac{1}{T} \left[ \theta(x) - A(x) \right] \right],$$
(12)

其中

$$A(x) = [\theta(x)]^{2} + \frac{8}{9}[S(S+1)]^{2} \sum_{p} J_{p}^{2} Z_{p} x^{2}$$
(13)

很明显的可以看出[ $\theta(x)$ ] < A(x),这意味着随着 温度的降低,磁化率的倒数将向下弯曲,如图 3.



图 2 5-300 K 范围内 Hg0.89 Mn0.11 Te 磁化率倒数与温度的关系



图 3 5-40 K 范围内 Hg0.89 Mn0.11 Te 磁化率倒数与温度的关系 曲线

#### 4. 结 论

(1)在磁场强度绝对值小于 800 kA/m 磁场范围 内 Hg<sub>0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 的磁化强度与磁场强度呈线性 关系.

- [1] Ibragimova M I, Petukhov V Y 2004 Low Temp. Phys. 30 904
- [2] Reig C, Sochinskii N V, Munoz V 1999 J. Cryst Growth 197 688
- [3] Bastard G, Rigaux C, Mycielski A 1977 Phys. Stat. Solidi B 79 585
- [4] Jaczynski M, Kossut J, Galazka R R 1978 Phys. Stat. Solidi B 88 73
- [5] Bastard G, Rigaux C, Guldner Y, Mycielski A, Furdyna J K, Mullin D P 1981 Phys. Rev. B 24 1961
- [6] Jaczynski M , Dobrowolski W 1981 J. Phys. C 14 5689
- [7] Ghislotti G, Masseroni C, Zappettini A, Martinelli M, Mycielski A 1998 Appl. Phys. Lett. 72 3417
- [8] Mycielski A, Mycielski J 1980 J. Phys. Soc. Jpn. Suppl. A 49 807
- [9] Spalek J , Lewicki A , Tarnawski Z , Furdyna J K , Galazka R R , Obuszko Z 1986 Phys. Rev. B 33 3407
- [10] Qiu M Q, Fang M H 2006 Acta Phys. Sin. 55 4912 (in Chinese)

(2)H<sub>g0.89</sub> Mn<sub>0.11</sub> Te 在 5 到300 K之间是单一的顺磁态,温度高于 40 K 时,Mn<sup>2+</sup>离子之间存在的弱的反铁磁相互作用.

(3)在高温区磁化率和温度服从居里-万斯定 律,低于40K时,磁化率倒数向下弯曲,偏离居里-万斯定律,表现出顺磁增强现象.

[邱梅清、方明虎 2006 物理学报 55 4912]

- [11] Cao X S, Xiao C T, Williams G, Roshko R 2005 Chin. Phys. 14 1051
- [12] Wu Z H, Luo J L, Chen Z J, Liu G T, Wang N L, Wang K Q, Wang W L 2005 Acta Phys. Sin. 54 832 (in Chinese)[吴子华、 雒建林、陈兆甲、刘光同、王楠林、王克勤、王万录 2005 物理 学报 54 832]
- [13] Kosyachenko L A , Ostapov S E , Markov A V ,Rarenko I M 2003 Infrared Phys. Technol. 44 1
- [14] Price M W , Scripa R N , Szofran F R , Motakef S , Hanson B 2004 J. Cryst Growth 273 179
- [15] Nagata S , Galazka R R , Mullin D P , Akbarzadeh H 1980 Phys. Rev. B 22 3331
- [ 16 ] Furdyna J K 1982 J. Vac. Sci. Technol. 21 220
- [17] Oseroff S B 1982 Phys. Rev. B 25 6584

# Magnetization and susceptibility of diluted magnetic semiconductor Hg<sub>0.89</sub>Mn<sub>0.11</sub>Te \*

Wang Ze-Wen<sup>†</sup> Jie Wan-Qi

( College of Material Science and Engineering, Northwestern Polytechnical University, Xi 'an 710012, China)
 ( Received 31 August 2006; revised manuscript received 18 October 2006)

#### Abstract

The magnetization measurements of  $Hg_{0.89}$   $Mn_{0.11}$  Te sample grown by vertical Bridgman method have been carried out at 5 K under external field from – 5200 to 5200 kA/m, and at 800 kA/m from 5 to 300 K with zero-field-cooling and field-cooling respectively using the superconducting quantum interference device (SQUID) magnetometer. Based on the mean field theory, a modified Brillouin function is well fitted with the data of magnetization vs magnetic field over the entire magnetic field range. The analysis indicates that there is an antiferromagnetic exchange coupling between Mn ions. The results of reciprocal susceptibility vs temperature show Curie-Weiss behaviors at temperatures above 40 K and a deviation from the Curie-Weiss law at temperatures from 5 to 40 K, which shows that the antiferromagnetic exchange coupling between Mn ions increases with decreasing temperature. The result was explained by extending higher-order terms in the calculation of susceptibility.  $Hg_{0.89}$   $Mn_{0.11}$  Te is a paramagnetic material in temperature range from 5 to 300 K.

Keywords :  $Hg_{0.89}Mn_{0.11}$  Te , magnetization , susceptibility , modified Brillouin function PACC : 7590 , 7530C , 7520 , 7530E

<sup>\*</sup> Project supported by the State Key Program of National Natural Science of China (Grant No. 50336040).

<sup>†</sup> E-mail:wsmengyu@hotmail.com