

07.4

Спиновый эффект Холла в поликристаллических образцах немагнитных металлов пятого и шестого периодов

© В.К. Игнатьев, С.В. Перченко, Д.А. Станкевич

Волгоградский государственный университет, Волгоград, Россия
E-mail: vkignatjev@yandex.ru

Поступило в Редакцию 23 ноября 2022 г.

В окончательной редакции 23 ноября 2022 г.

Принято к публикации 10 января 2023 г.

Предложен способ оценки коэффициента спинового эффекта Холла для поликристаллических образцов чистых немагнитных металлов. Вычислены поперечные удельные сопротивления, характеризующие спиновый эффект Холла, для различных металлов пятого и шестого периодов. Показано, что результат в пределах погрешности измерений согласуется с экспериментальными данными.

Ключевые слова: спиновый эффект Холла, спин-орбитальное взаимодействие, водородоподобные волновые функции.

DOI: 10.21883/PJTF.2023.06.54812.19437

Спиновый эффект Холла (СЭХ) заключается в том, что зарядовый ток в немагнитных металлах с сильным спин-орбитальным взаимодействием приводит к возникновению измеряемого поперечного спинового тока [1]. Современное состояние экспериментальной техники и теоретического описания СЭХ подробно изложено во многих обзорных работах (см., например, [1–3]). В последнее время особое внимание уделяется исследованию влияния структуры эпитаксиальных пленок металлов на спин-зависимые транспортные свойства. Так, показано, что в некоторых случаях в поликристаллических образцах наблюдается увеличение угла СЭХ по сравнению с таковым для монокристаллических [4].

Чтобы определить величину СЭХ в однородном и изотропном поликристалле, запишем спин-орбитальную добавку в энергию электрона, находящегося в электрическом поле с потенциалом $\Phi(\mathbf{r})$:

$$\hat{V} = -\frac{\hbar e}{2m^2 c^2} \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \hat{s}_\alpha \frac{\partial \Phi}{\partial r_\beta} \hat{p}_\gamma. \quad (1)$$

Здесь m — масса электрона с зарядом $-e$; $\varepsilon_{\alpha\beta\gamma}$ — единичный антисимметричный тензор Леви-Чивиты. Динамика импульса электрона, создаваемая возмущением (1), описывается уравнением для средних

$$\frac{dp_\delta}{dt} = \frac{i}{\hbar} \left\langle \left[\hat{V}, \hat{p}_\delta \right] \right\rangle = \frac{\hbar e \varepsilon_{\alpha\beta\gamma}}{2m^2 c^2} \left\langle \hat{s}_\alpha \frac{\partial^2 \Phi}{\partial r_\beta \partial r_\delta} \hat{p}_\gamma \right\rangle. \quad (2)$$

Потенциал электрона проводимости в кристаллическом поле ионных остатков с эффективным зарядом Ze и координатами \mathbf{R}_k имеет вид $\Phi(\mathbf{r}) = \frac{eZ}{4\pi\epsilon_0} \sum_{k=1}^N \frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{R}_k|}$.

Величину Z можно оценить, приравняв координату максимума радиальной компоненты водородоподобной волновой функции к радиусу атома R_a . Так, для платины $R_a = 1.39 \cdot 10^{-10}$ м, что для $6s$ -оболочки соответствует

$Z \approx 22.45$. В табл. 1 приведены свойства атомов исследованных металлов, конфигурации их электронных оболочек, а также параметры их кристаллических решеток.

Для любого спинового состояния электрона можно выбрать такое направление оси z , чтобы проекция его спина на эту ось имела определенное значение s_z , т.е. $\psi(\mathbf{r}, \sigma) = \psi(\mathbf{r})\delta(\sigma, s_z)$. Запишем волновую функцию коллективизированного электрона проводимости в виде разложения по функциям Ванье:

$\psi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{n=1}^N \Psi(\mathbf{r} - \mathbf{R}_n) \exp(i\mathbf{k}\mathbf{R}_n)$, где $\Psi(\mathbf{r})$ — водородоподобная функция электрона, \mathbf{R}_n — вектор трансляции, N — количество узлов в кристаллите. Тогда после суммирования в (2) по спиновым переменным, положив $\langle \mathbf{s} \rangle = \mathbf{s}$ и выполнив замену переменных $\mathbf{r} - \mathbf{R}_k \rightarrow \mathbf{r}$, получаем

$$\frac{dp_\delta}{dt} = \frac{\hbar^2 e^2 Z s_\alpha}{8\pi\epsilon_0 m^2 c^2 N} \sum_{n,m,k=1}^N \exp(i\mathbf{k}(\mathbf{R}_n - \mathbf{R}_m)) \times \left\langle \Psi(\mathbf{r} + \mathbf{R}_k - \mathbf{R}_m) \left| 3 \frac{r_\delta}{r^5} \hat{l}_\alpha - \frac{\varepsilon_{\alpha\delta\gamma}}{\hbar r^3} \hat{p}_\gamma \right| \Psi(\mathbf{r} + \mathbf{R}_k - \mathbf{R}_n) \right\rangle. \quad (3)$$

Водородоподобные функции малы при $r > na_B/Z$, где $a_B = 5.29 \cdot 10^{-11}$ м — боровский радиус, n — главное квантовое число. Поэтому среднее в правой части (3) отлично от нуля только при $\mathbf{R}_n - \mathbf{R}_k = 0$ или $\pm \mathbf{a}_v$ и $\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_k = 0$ или $\pm \mathbf{a}_v$, где \mathbf{a}_v — вектор, проведенный к ближайшему соседу. Тогда с учетом эрмитовости и нечетности оператора получаем

$$\frac{dp_\delta}{dt} = -\frac{\hbar^2 e^2 Z s_\alpha}{4\pi\epsilon_0 m^2 c^2} \sin(\mathbf{k}\mathbf{a}_v) \text{Im} \left\langle \Psi_v \left| 3 \frac{r_\delta}{r^5} \hat{l}_\alpha - \frac{\varepsilon_{\alpha\delta\gamma}}{\hbar r^3} \hat{p}_\gamma \right| \Psi \right\rangle. \quad (4)$$

Здесь $\Psi_v(\mathbf{r}) = \Psi(\mathbf{r} + \mathbf{a}_v) - \Psi(\mathbf{r} - \mathbf{a}_v)$ — функция с четностью, противоположной четности функции $\Psi(\mathbf{r})$, и подразумевается суммирование по v .

Таблица 1. Параметры решеток и электронных конфигураций металлов пятого и шестого периодов

Металл	Структура решетки	Электронная конфигурация	R_a , pm	Z	b_1	b_2	b_3
Pt	ГЦК	$5d^9 6s^1$	139	22.45	117	166	204
α -W	ОЦК	$5d^4 6s^2$	137	22.77	118	136	193
β -W	A15	$5d^4 6s^2$	137	22.77	121	187	195
Ta	ОЦК	$5d^3 6s^2$	149	21	113	131	185
Au	ГЦК	$5d^{10} 6s^1$	144	21.7	118	167	205
Mo	ОЦК	$4d^4 5s^1$	139	15.22	78.6	90.4	128
Pd	ГЦК	$4d^{10} 5s^0$	137	15.4	80.1	113	138
Nb	ОЦК	$4d^5 5s^1$	146	14.4	78.47	90.49	128

Правая часть соотношения (4) равна силе, действующей на электрон. Ее можно представить как результат действия на электрон холловского электрического поля \mathbf{E}_{SH} . Полагая в (4) $\mathbf{k} = \mathbf{j}mR_H/\hbar$, где \mathbf{j} — плотность зарядового тока, $R_H = 1/(en_e)$ — постоянная Холла, n_e — концентрация электронов проводимости, получим в первом порядке малости по $\mathbf{k}\mathbf{a}_\nu$

$$E_{SH\alpha} = \frac{\hbar Ze R_H s_\beta j_\mu}{4\pi\epsilon_0 mc^2} a_{\nu\mu} \text{Im} \left\langle \Psi_\nu \left| \frac{\epsilon_\alpha \beta_\gamma}{\hbar r^3} \hat{p}_\gamma - 3 \frac{r_\alpha}{r^5} \hat{l}_\beta \right| \Psi \right\rangle. \quad (5)$$

Соотношение (5) записано в системе координат, связанной с кристаллическими осями. Введем лабораторную систему координат, связанную с приборами, которые задают ток проводимости и измеряют компоненты спина. Компоненты векторов и тензоров в лабораторной системе будем обозначать индексами со штрихами, а в системе координат, связанной с осями кристаллита, — индексами без штрихов. Преобразуем вектор плотности тока и спина электронов проводимости из лабораторной системы в систему кристаллических осей $j_\mu = p_{\mu\mu'} j_{\mu'}$, $s_\beta = p_{\beta\beta'} s_{\beta'}$, а вектор холловского электрического поля — из системы кристаллических осей в лабораторную $E_{SH\alpha'} = p_{\alpha'\alpha}^{-1} E_{SH\alpha}$, где $p_{\alpha'\alpha}$ — унитарная матрица поворота, которую удобно выражать через углы Эйлера. Подставим это преобразование в уравнение (5) и усредним вектор \mathbf{E}_{SH} в макроскопической области по случайным ориентациям кристаллитов

$$E_{SH\alpha'} = \frac{\hbar Ze R_H s_{\beta'} j_{\mu'} p_{\alpha'\alpha}^{-1} p_{\beta\beta'} p_{\mu\mu'}}{4\pi\epsilon_0 mc^2} \times a_{\nu\mu} \text{Im} \left\langle \Psi_\nu \left| \frac{\epsilon_\alpha \beta_\gamma}{\hbar r^3} \hat{p}_\gamma - 3 \frac{r_\alpha}{r^5} \hat{l}_\beta \right| \Psi \right\rangle. \quad (6)$$

Здесь черта означает усреднение по случайным равномерно распределенным углам Эйлера. Аналитическое усреднение уравнения (6) дает

$$\mathbf{E}_{SH} = \frac{R_S}{n_e} \mathbf{j} \times \mathbf{P},$$

$$R_S = \frac{\hbar R_H e Z}{48\pi\epsilon_0 mc^2} \text{Re} \left\langle \Psi_\nu \left| \frac{3\mathbf{r}(\mathbf{r}\mathbf{a}_\nu) - \mathbf{a}_\nu r^2}{r^5} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right| \Psi \right\rangle. \quad (7)$$

где $\mathbf{P} = 2sn_e$ — вектор плотности спиновой поляризации.

Для s -электрона проводимости, направляя полярную ось вдоль вектора \mathbf{a}_ν , получим для каждой пары ближайших соседей

$$\left\langle \Psi_\nu \left| \frac{3\mathbf{r}(\mathbf{r}\mathbf{a}_\nu) - \mathbf{a}_\nu r^2}{r^5} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right| \Psi \right\rangle = \frac{4bZ^3}{a_B^3} \int_0^\infty \frac{dR(x)/dx}{x} dx \int_0^1 y \{R(x_1) - R(x_2)\} dy, \quad (8)$$

где $R(x)$ — радиальная часть волновой функции, $x = Zr/a_B$, $x_1 = \sqrt{x^2 + b^2 + 2xb}$, $x_2 = \sqrt{x^2 + b^2 - 2xb}$, $b = Za/a_B$. Для гранцентрированной решетки платины каждый атом имеет шесть пар ближайших соседей на расстоянии $a = 2.77 \cdot 10^{-10}$ м, далее три пары на расстоянии $3.92 \cdot 10^{-10}$ м и двенадцать пар на расстоянии $4.48 \cdot 10^{-10}$ м. Тогда для этих трех групп атомов получим следующие безразмерные параметры: $b_1 = 117$, $b_2 = 166$, $b_3 = 204$, которые используются при вычислении (8). Эти параметры для различных металлов также приведены в табл. 1. Следует отметить, что основной вклад в величину R_S вносят ближайшие атомы, а остальные — на порядок меньший. Полагая для платины при 80 К $R_H = -2 \cdot 10^{-11} \text{ м}^3/(\text{А} \cdot \text{с})$, для s -электронов получаем $R_S^s = 3.48 \cdot 10^{-9} \Omega \cdot \text{м}$. В эксперименте обычно определяется спин-холловский угол $\theta_{SH} = \sigma R_S^s$ [1,3]. Здесь σ , обычно обозначаемая как σ_{xx} , — проводимость металла в отсутствие спин-орбитального взаимодействия. Для платины при 10 К $\sigma = 8.1 \cdot 10^6 (\Omega \cdot \text{м})^{-1}$, $\theta_{SH} = 0.021 \pm 0.005$ [5]. Соответственно $R_S^s = (2.6 \pm 0.7) \cdot 10^{-9} \Omega \cdot \text{м}$.

В табл. 2 приведены теоретические и экспериментальные значения параметра R_S для различных металлов. Вольфрам в метастабильной β -модификации имеет кристаллическую решетку вида A15 (как у SiCr₃). Для атомов в центре и вершинах существует шесть пар ближайших соседей на расстоянии $2.81 \cdot 10^{-10}$ м, а для атомов на гранях — одна пара ближайших соседей на расстоянии $2.51 \cdot 10^{-10}$ м. Расчет показывает, что атомы обеих подрешеток вносят одинаковый вклад в СЭХ.

При анализе элементов пятого периода расчет по формуле (8) для s -электронов проводимости дает значения,

Таблица 2. Экспериментальные значения сопротивления спинового эффекта Холла (R_S^e) и значения, рассчитанные по формуле (8) для s -электронов (R_S^s) и по формуле (9) для p -электронов (R_S^p)

Металл	$\sigma, 10^5$ ($\Omega \cdot \text{m}$) ⁻¹	$\theta_{SH}, \%$	Лит. ссылка	$R_H, 10^{-11}$ $\text{m}^3/(\text{A} \cdot \text{s})$	$R_S^e, 10^{-9} \Omega \cdot \text{m}$	$R_S^s, 10^{-9}$ $\Omega \cdot \text{m}$	$R_S^p, 10^{-9}$ $\Omega \cdot \text{m}$
Pt	81	2.1 ± 0.5	[5]	-2	2.6 ± 0.7	3.48	-
Ta	3	-0.37 ± 0.10	[5]	9.75	-13 ± 4	-15.38	-
Au	200	0.25 ± 0.05	[6]	-7.3	12 ± 3	7.1	-
α -W	47.6	~ -7	[7]	11.1	-14.7	-13.96	-
β -W	20.4	-35 ± 4	[8]	-162	$(7.4 \pm 0.8) \cdot 10^2$	$1.66 \cdot 10^3$	-
Mo	28	-0.8 ± 0.18	[5]	18	-2.8 ± 0.7	25.4	-4.41
Nb	11	-0.87 ± 0.20	[5]	8.88	-7.9 ± 2.0	10.1	-11.9
Pd	40	0.64 ± 0.10	[9]	-8.45	1.6 ± 0.3	-13.4	1.64

не согласующиеся с экспериментальными. Вместе с тем известно, что в переходных металлах зоны проводимости перекрываются, и значительная часть электронов проводимости может быть образована коллективизацией $5p$ -электронов. Особенно это актуально, видимо, для палладия, у которого $5s$ -электроны отсутствуют. Для p -электрона проводимости направим полярную ось вдоль вектора \mathbf{a}_v и будем отсчитывать угол φ от плоскости \mathbf{a}_v, \mathbf{r} . В сферических координатах орт \mathbf{e}_φ будет ортогонален плоскости \mathbf{a}_v, \mathbf{r} , а орт \mathbf{e}_θ образует с полярной осью угол $\pi/2 + \theta$. Нормированная волновая функция $5p$ -электрона, ориентированная вдоль полярной оси, имеет вид $\Psi = i\sqrt{3/(4\pi)}R_{5,1}(x)\cos\theta$.

Тогда для каждой пары ближайших соседей получим

$$\begin{aligned} \left\langle \Psi_v \left| \frac{3\mathbf{r}(\mathbf{r}\mathbf{a}_v) - \mathbf{a}_v r^2}{r^5} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \right| \Psi \right\rangle &= \frac{3bZ^3}{2\pi a_B^3} \\ &\times \int_0^\infty \left(\frac{2ydR_{5,1}(x)/dx}{x} - \frac{1-y^2}{x^2} R_{5,1}(x) \right) dx \\ &\times \int_0^1 y \{R_{5,1}(x_1) - R_{5,1}(x_2)\} dy. \end{aligned} \quad (9)$$

Для металлов пятого периода в табл. 2 приведены значения сопротивления спинового эффекта Холла, рассчитанные по формулам (8) и (9). Хорошее согласие с экспериментом получается, если принять, что в молибдене 95% электронов проводимости являются коллективизированными p -электронами, а 5% — s -электронами; для ниобия 85% электронов — p -электроны, а 15% — s -электроны.

Теоретический анализ показал, что случайная ориентация кристаллитов не приводит исчезновению спинового тока, а расчет согласуется с экспериментальными наблюдениями. В формуле (6) отдельно учтены вклады в эквивалентное электрическое поле спин-орбитального взаимодействия и зонной структуры металла, вклад которой выражается через константу электронного эффекта Холла. Предложенный способ усреднения по случайным ориентациям кристаллитов может быть особен-

но полезен при вычислении констант спин-зависимого транспорта в хиральных магнетиках, где недавно была обнаружена [10] сильная электронная поляризация в макроскопических поликристаллических образцах.

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет средств гранта Российского научного фонда № 22-22-20035 (<https://rscf.ru/project/22-22-20035/>) и за счет средств бюджета Волгоградской области.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] A. Hoffmann, IEEE Trans. Magn., **49**, 5172 (2013). DOI: 10.1109/TMAG.2013.2262947
- [2] J. Sinova, S.O. Valenzuela, J. Wunderlich, C.H. Back, T. Jungwirth, Rev. Mod. Phys., **87**, 1213 (2015). DOI: 10.1103/RevModPhys.87.1213
- [3] Y. Niimi, Y. Otani, Rep. Prog. Phys., **78**, 124501 (2015). DOI: 10.1088/0034-4885/78/12/124501
- [4] Y. Xiao, H. Wang, E.E. Fullerton, Front. Phys., **9**, 791736 (2022). DOI: 10.3389/fphy.2021.791736
- [5] M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D.H. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura, Y. Otani, Phys. Rev. B, **83**, 174405 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevB.83.174405
- [6] V. Vlaminc, J.E. Pearson, S.D. Bader, A. Hoffmann, Phys. Rev. B, **88**, 064414 (2013). DOI: 10.1103/PhysRevB.88.064414
- [7] C.-F. Pai, L. Liu, H.W. Tseng, D.C. Ralph, R.A. Buhrman, Appl. Phys. Lett., **101**, 122404 (2012). DOI: 10.1063/1.4753947
- [8] Q. Hao, W. Chen, G. Xiao, Appl. Phys. Lett., **106**, 182403 (2015). DOI: 10.1063/1.4919867
- [9] O. Mosendz, V. Vlaminc, J.E. Pearson, F.Y. Fradin, G.E.W. Bauer, S.D. Bader, A. Hoffmann, Phys. Rev. B, **82**, 214403 (2010). DOI: 10.1103/PhysRevB.82.214403
- [10] H. Shishido, R. Sakai, Y. Hosaka, Y. Togawa, Appl. Phys. Lett., **119**, 182403 (2021). DOI: 10.1063/5.0074293