

Продольное магнитосопротивление и осцилляции Шубникова де Гааза в нитях висмута легированных Sn

А. НИКОЛАЕВА^{1,2*}, Л. КОНОПКО^{1,2}, А. ЦУРКАН¹, Г. ПАРА¹, О. БОТНАРЬ¹

¹ Институт Электронной Инженерии и Нанотехнологий им. Д.Гицу, АНМ

² Международная Лаборатория Сильных Магнитных Полей и Низких Температур, Вроцлав, Польша
[*a.nikolaeva@nano.asm.md](mailto:a.nikolaeva@nano.asm.md)

Абстракт - В данной работе представлены результаты исследования Шубников де Газ осцилляций в монокристаллических нитях висмута легированного акцепторной примесью Sn до 0.07at%. Нити получались литьем из жидкой фазы в стеклянной оболочке и представляли собой монокристаллы строго цилиндрической формы с ориентацией (1011) вдоль оси нити.

В задачи настоящих исследований входило изучение особенностей проявления размерных эффектов и топологических переходов, обнаруженных в нитях чистого висмута при варьировании параметров энергетического спектра методом легирования Sn. Изменение сечения поверхности Ферми при легировании регистрировалось с помощью осцилляций Шубникова де Гааза.

Ключевые слова – нити Bi-Sn, осцилляции Шубникова де Газа, гальваномагнитный размерный эффект, топологический переход

I. ВВЕДЕНИЕ

Исследованию массивных образцов висмута легированных акцепторной (Sn, Pb) примесью посвящено достаточно большое количество работ, целью которых в основном было определение параметров спектра носителей в точке Т зоны Бриллюэна, определение энергетических зависимостей циклотронных масс носителей и сечений электронной и дырочной поверхностей ферми в L точках, расчеты параметров закона дисперсии носителей в рамках определенных моделей [1].

Малость собственной концентрации носителей в Bi позволяет менять ее в широких пределах, что в совокупности с малой плотностью состояний в актуальных зонах приводит к значительным изменениям Фермиевской энергии. С теоретической точки зрения это дает дополнительную возможность в исследовании зонной структуры, сканированием ее уровнем Ферми, а также дает возможность реализовать и исследовать различные виды электронных топологических переходов. С практической точки зрения легирование позволяет оптимизировать термоэлектрические параметры.

В результате легирования висмута акцепторной примесью четко выделяются сплавы со смешанной электронно-дырочной проводимостью, одно- и двузонной дырочной проводимостью. Легирование акцепторной примесью (олова) смещает уровень Ферми Bi по шкале энергий вниз (Рис. 1).

При легировании висмута оловом, концентрация дырок в Т возрастает во всей области легирования, а электронов в точке L, уменьшается, вплоть до их исчезновения. В определенной области концентраций, когда ϵ_F попадает в область запрещенных энергий в точке L, носители в L отсутствуют и проводимость

осуществляется только Т-дырками. При дальнейшем легировании появляются носители – легкие дырки в L.

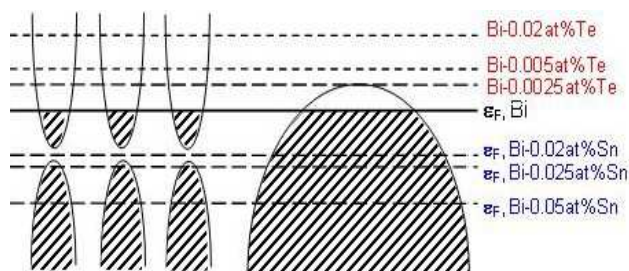


Рис. 1 Схематическое смещение уровня Ферми электронов и дырок в Bi при легировании акцепторной и донорной примесью.

В задачи настоящих исследований входило изучение особенностей проявления размерных эффектов, обнаруженных в нитях чистого висмута при варьировании параметров энергетического спектра методом легирования Sn. Изменение сечения поверхности Ферми при легировании регистрировалось с помощью осцилляций Шубникова де Гааза.

II. МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЯ. ОБРАЗЦЫ.

Монокристаллические нити чистого и легированного оловом Bi в стеклянной оболочке получались литьем из жидкой фазы по методу Улитовского [2]. Для получения нитей легированных Sn в качестве исходного материала служили монокристаллические слитки соответствующего состава. Были получены и исследованы нити в стеклянной оболочке с диаметрами от 100 нм и выше, следующих составов: Bi-0.01at%Sn, Bi-0.02at%Sn, Bi-0.025at%Sn, Bi-0.05at%Sn, Bi-0.07at%Sn. Для улучшения структурного совершенства нитей была проведена гомогенизация нитей методом

многократной горизонтальной зонной перекристаллизации. Монокристалличность и ориентация образцов определялась с помощью метода рентгеновской дифракции, осцилляций ШдГ и контролировалась с помощью диаграмм вращения поперечного магнетосопротивления.

На рис. 2 приведены угловые диаграммы поперечного магнетосопротивления нити Bi-0.02at%Sn. Как и нити чистого висмута, нити легированные Sn имеют одну и ту же ориентацию (1011) вдоль оси нити. В данной ориентации ось нити отклонена на угол $19,5^\circ$ в биссекторно - тригональной плоскости. При $\theta = 90^\circ$ магнитное поле направленно вдоль оси второго порядка C_2 ($H \parallel C_2$) (бинарная ось), а при $\theta = 0$ направление магнитного поля почти совпадает с тригональной осью C_3 ($H \parallel C_3$).

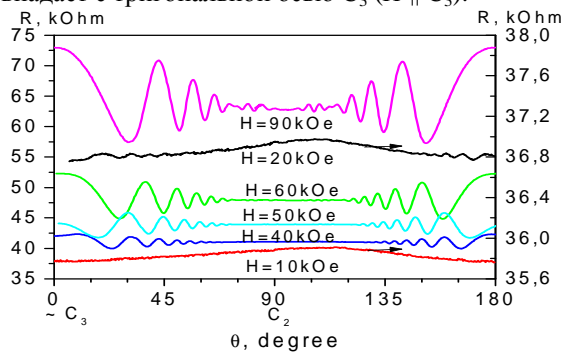


Рис. 2 Диаграммы вращения поперечного магнетосопротивления $R(\theta)$ нити Bi-0.02at%Sn, $d = 400$ нм, $T = 4.2$ К при различных значениях магнитного поля H .

Изучение угловых диаграмм вращения поперечного магнетосопротивления позволило исследовать ШдГ осцилляции в определенных направлениях и получать информацию о максимальных и минимальных сечениях поверхности Ферми электронов и дырок при легировании. Исследование ШдГ осцилляций проводилось в интервале температур 2.1 – 4.2 К в магнитных полях до 140 кОе в Международной Лаборатории Сильных Магнитных Полей и Низких Температур (Вроцлав, Польша).

III. РЕЗУЛЬТАТЫ И ДИСКУСИЯ

Как отмечалось выше, введение примесей Sn в Bi смещает уровень Ферми дырок \mathcal{E}_F^T в точке T зоны Бриллюэна по шкале энергии вниз и приводит к изменению числа и характера энергетических экстремумов. В работе [3] было показано, что при легировании Bi оловом до 0.02at%, уровень Ферми T дырок попадает в область запрещенных энергий в L и проводимость при низких температурах осуществляется только T дырками, а при легировании более чем 0.025at%Sn, проводимость при 4.2 К осуществляется появляющимися при смещении \mathcal{E}_F^T легкими дырками в точке L и тяжелыми дырками в точке T зоны Бриллюэна. Для определения положения уровня Ферми дырок \mathcal{E}_F^T использовался метод ШдГ осцилляций.

На рис. 3 представлены осцилляции ШдГ на продольном магнетосопротивлении $R(H)$ для нитей

висмута с различным составом легирующей примеси Sn. Можно было ожидать ухудшение качества ШдГ осцилляций при легировании и понижении уровня Ферми по шкале энергий вниз, так как возрастание концентрации примеси должно приводить к резкому уменьшению времени релаксации τ . Однако, ухудшение осцилляций не наблюдалось. Введение акцепторов в решетку Bi приводит к росту концентрации «тяжелых» дырок в T- экстремуме с большой плотностью состояний. В широком интервале магнитных полей T экстремум является «демпфером» осцилляций уровня Ферми в магнитном поле. Кроме того, в продольной ориентации ($H \parallel I$) монотонный ход на $R(H)$ значительно меньше, чем при $H \perp I$.

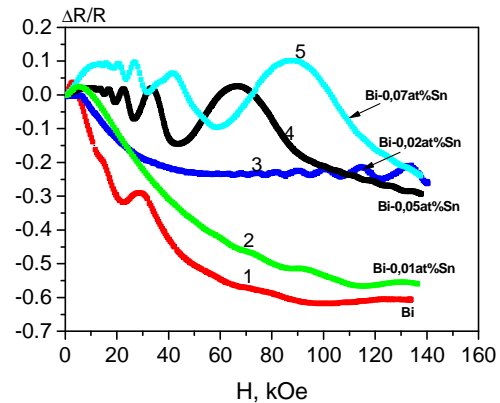


Рис. 3 Зависимости приведенного продольного магнетосопротивления $\frac{\Delta R}{R}(H)$ от магнитного поля в

нитях висмута и легированного Sn при $T = 4.2$ К. 1. Bi, $d = 480$ нм, 2. Bi-0.01at%Sn, $d = 550$ нм, 3. Bi-0.02at%Sn, $d = 500$ нм, 4. Bi-0.05at%Sn, $d = 550$ нм, 5. Bi-0.07at%Sn, $d = 600$ нм.

Период ШдГ осцилляций от T-дырок уменьшается от значения $\Delta_1 = 0.55 \cdot 10^{-5} \text{ Oe}^{-1}$ для нитей чистого Bi до значения $0.05 \cdot 10^{-5} \text{ Oe}^{-1}$ для нитей Bi-0.05at%Sn. Период осцилляций от $L_{2,3}$ – электронных эллипсоидов, составляет в чистом Bi $\Delta = 3,1 \cdot 10^{-5} \text{ Oe}^{-1}$ (рис. 4).

С увеличением концентрации Sn четко наблюдаются осцилляции ШдГ от T-дырок в сильных магнитных полях в легированных нитях висмута всех составов, в то время, как в нитях чистого Bi, в данном кристаллографическом направлении осцилляции от T-дырок видны в исключительных случаях и только на производных $dR/dH(H)$. Наиболее четко осцилляции видны у нитей состава Bi-0.02at%Sn, когда монотонная часть в магнитном поле > 30 кОе на $R(H)$ отсутствует (Рис. 3, кривая 3).

На рис. 4 приведены зависимости квантового номера n осцилляций ШдГ от обратного поля H^{-1} для вышеприведенных кривых. С возрастанием степени легирования Bi акцепторной примесью Sn, т.е. с понижением уровня Ферми, сечение поверхности Ферми T-дырок, пропорциональное частоте осцилляций $f = \Delta_T^{-1} = \frac{\hbar c S}{2\pi e}$ увеличивается и область существования ШдГ осцилляций смещается в сильные магнитные поля.

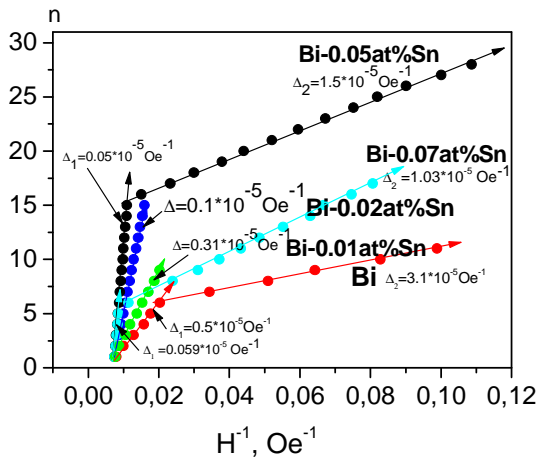


Рис. 4 Зависимости квантового номера n ШдГ осцилляций от обратного поля H^{-1} нитей Bi легированных Sn. Δ_1 - период ШдГ осцилляций от T дырок, Δ_2 - период ШдГ осцилляций от $L_{2,3}$ электронных эллипсоидов.

В нитях с составом легирующей примеси олова 0.02-0.025at%Sn осцилляции от L- электронов не наблюдаются, а в нитях с составом Bi > 0.025at%Sn появляются легкие дырки в L регистрируемые с помощью осцилляции ШдГ в слабых магнитных полях, период осцилляций которых уменьшается от значения $1.5 \cdot 10^{-5} \text{ Oe}^{-1}$ для нитей Bi-0.05at%Sn до $1.0 \cdot 10^{-5} \text{ Oe}^{-1}$ для состава 0.07at%Sn характеризуя появление и рост сечений «легких» дырок в L при легировании нитей акцепторной примесью Sn более 0.025at%Sn.

На рисунках 5 и 6 приведены полевые зависимости продольного магнитосопротивления $R(H)$ ($H \parallel I$) нити Bi-0.02at%Sn при различных значениях температуры.

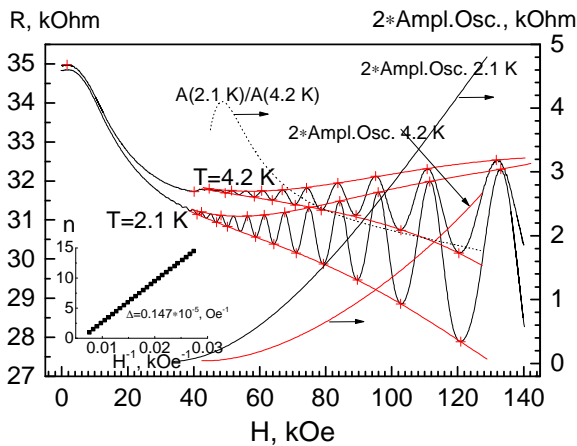


Рис. 5 ШдГ осцилляции на продольном магнитосопротивлении $R(H)$ нити Bi-0.02at%Sn, $d = 400$ нм при двух температурах 4.2 и 2.1 К для расчета циклотронных масс и зависимости амплитуды осцилляции ШдГ от магнитного поля ($Ampl.(H)$) (шкала справа) для расчета температуры Дингла. На вставке: зависимость квантового номера n ШдГ осцилляций от обратного поля H^{-1} .

Большое количество экстремумов и возможность наблюдать ШдГ осцилляции на $R(H)$ в продольной конфигурации при 2.1 К и 4.2 К позволили с хорошей точностью рассчитать периоды ШдГ осцилляции $\Delta(H^{-1})$ и циклотронные массы, а также температуру Дингла с хорошей точностью ($\pm 5\%$). При $H \parallel I$, циклотронная масса определяемая из зависимости амплитуды ШдГ осцилляции от температуры (Рис. 5) составляла $m_c^T = 0,43 m_0$, что хорошо согласуется с данными массивных образцов [1, 4] с учетом того факта, что при $H \parallel I$, ось нити отклонена от биссекторной оси на угол $\approx 20^\circ$ [5, 6] и заключения работы [1] о росте циклотронных масс T-дырок с увеличением сечения, из-за непараболичности спектра T-дырок. Температура Дингла T_d , определяемая из зависимости амплитуды ШдГ осцилляций от магнитного поля и составляли 2 К, что указывает на исключительно высокое структурное совершенство исследуемых нитей данного состава. На это указывает и факт наблюдения ШдГ осцилляций на $R(H)$ при температурах до 20 К для состава Bi-0.02at%Sn (Рис. 6).

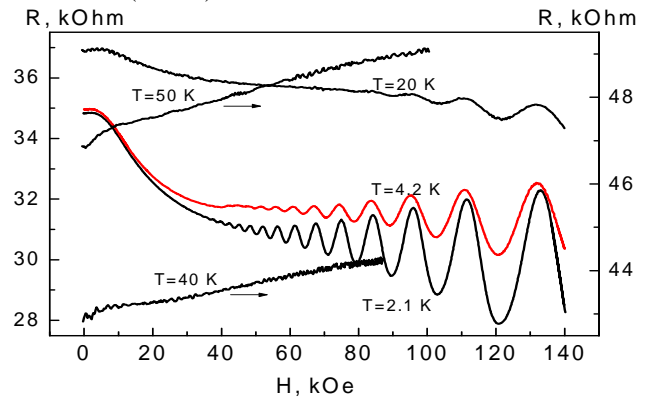


Рис. 6 Полевые зависимости продольного магнитосопротивления $R(H)$ ($H \parallel I$) и ШдГ осцилляции у нитей Bi-0.02at%Sn, $d = 400$ нм, при различных значениях температуры.

В работе [1] было показано, что анизотропия поверхности Ферми T- дырок не меняется вплоть до энергий $\mathcal{E}_F^T = 100$ мэВ и представляет собой эллипсоид вращения. Это позволило нам рассчитать энергию Ферми дырок в T \mathcal{E}_F^T в двузонном приближении согласно известным формулам [33] с точностью ($\pm 5\%$):

$$\mathcal{E}_F^T = \mathcal{E}_{i\ddot{a}d} - \frac{1}{2} \mathcal{E}_g^T + \left[\mathcal{E}_{i\ddot{a}d}^2 + \left(\frac{1}{2} \mathcal{E}_g^T \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

$$\mathcal{E}_{i\ddot{a}d} = \frac{S_T}{2\pi m_c^T} = \frac{eh}{2\pi c} * \frac{\Delta_T^{-1}}{m_c^T} \quad (2)$$

$\mathcal{E}_g^T = 200$ мэВ, Δ_T^{-1} - частота осцилляций ШдГ от сечения дырочной поверхности Ферми в T, m_c^T - циклотронная масса дырок в T.

Значение \mathcal{E}_F^T энергии Ферми T-дырок составляло $\mathcal{E}_F^T = (45 \pm 2)$ мэВ, т.е. уровень Ферми T-дырок для данного состава нитей находился \approx в запрещенной зоне

в L (рис. 1). Аналогичным образом рассчитывалось положение энергии Ферми \mathcal{E}_F^T и для всех исследуемых составов нитей Bi , легированных Sn . В пределах погрешности измерений не прослеживалась зависимость \mathcal{E}_F^T от диаметра нитей, по крайней мере, до $d = 150$ нм. С возрастанием концентрации Sn \mathcal{E}_F^T изменялось от значения $\mathcal{E}_F^T = 12$ мэВ для чистого Bi до (104 ± 2) мэВ в нитях Bi-0.07at\%Sn .

Полевые зависимости продольного магнитосопротивления $R(H)$ $H \parallel I$ при 4.2 К имеют особенности в виде размерного максимума в слабых магнитных полях и наличия отрицательного магнитосопротивления в сильных магнитных полях, связанные с проявлением классического гальваномагнитного размерного эффекта (ГМРЭ) Макдональда-Чамберса [7, 8], характерного для нитей чистого Bi [9, 10]. Было установлено, что абсолютное значение магнитосопротивления в максимуме и поле $H_{\text{макс}}$ зависит также от концентрации Sn . При смещении \mathcal{E}_F^T по шкале энергий вниз до значения 36-38 мэВ, величина максимума на магнитосопротивлении $R(H)$ уменьшается. При дальнейшем легировании, максимум на продольном магнитосопротивлении исчезает. Особенностью полевых зависимостей продольного магнитосопротивления $R(H)$ нитей состава Bi-0.02at\%Sn и Bi-0.0025at\%Sn является отсутствие размерного максимума на продольном магнитосопротивлении $R(H)$ (Рис. 6), что является следствием электронного топологического перехода $3\uparrow+1\downarrow \rightarrow 1\downarrow$ вызванного легированием, при котором L носители (электроны исчезают).

При дальнейшем легировании $\text{Sn} > 0.0025\text{at\%Sn}$ в слабых магнитных полях появляются осцилляции от L -дырок и на зависимостях $R(H)$ вновь появляется размерный максимум в слабых магнитных полях (Рис. 3, кривые 4, 5) положение и величина которого зависят от диаметра нитей d . На отсутствие особенности в виде размерного максимума на продольном магнитосопротивлении в нитях легированного Sn висмута указывалось в работе [11]. Однако, в связи с тем, что в работе [11] не были исследованы ШдГ осцилляции в сильных магнитных полях, т.е. от T дырок и заключение о том, что в данном случае эффект связан с отсутствием L -носителей носил предположительный характер. Нами впервые было однозначно установлено из ШдГ осцилляций, что согласно расчетам \mathcal{E}_F^T составляет 48 мэВ, т.е. \mathcal{E}_F^T находится в запрещенной зоне в L . В данном случае при 4.2 К проводимость определяется только T -дырками и размерный максимум, в слабом магнитном поле на продольном магнитосопротивлении $R(H)$ отсутствует, что соответствует кинетической теории, согласно которой, если актуальными носителями являются лишь дырки в T , при $H \parallel C_1$ продольное магнитосопротивление равно нулю [12]. Таким образом, наличие размерного максимума на $R(H)$ при $H \parallel I$, связано исключительно с L -носителями, их

анизотропией и проявлением размерного эффекта Макдональда-Чамберса.

Как видно из рисунка 3 с увеличением степени легирования область отрицательного магнитосопротивления $R(H)$ в сильном магнитном поле уменьшается, т.е. проявление гальваномагнитного размерного эффекта ослабевает из-за уменьшения длины свободного пробега носителей, вследствие примесного рассеяния. Аналогичный эффект – исчезновение отрицательного магнитосопротивления наблюдается и при повышении температуры выше 40 К (Рис. 6), из-за уменьшения длины свободного пробега носителей вследствие рассеяния носителей на фононах.

БИБЛИОГРАФИЯ

- [1] Брандт Н.Б., Мюллер Р., Пономарев Я.Г. Исследование закона дисперсии носителей в висмуте, легированном примесями акцепторного типа. ЖЭТФ, т. 71, вып. 6(12), с. 2268-2277, 1976.
- [2] Улитовский А.В., Аверин Н.М. Способ изготовления металлической микропроволоки. Авторское свидетельство №161325, класс В 21, с.20.
- [3] Пара Г. Термомагнитные и термоэлектрические свойства нано и микронитей на основе полуметалла Bi . Дисс. на соиск. ученой степени доктора ф.-м. наук. Кишинев, 2012. 197 стр.
- [4] Мюллер Р. Исследование закона дисперсии носителей тока в висмуте. –Автореферат дис.канд.физ.-мат.наук. –Москва, 1978. 163с.
- [5] Брандт Н.Б., Гицу Д.В., Николаева А.А., Пономарев Я.Г. Исследование размерных эффектов в магнитном поле у тонких цилиндрических монокристаллов висмута. ЖЭТФ, т.72, вып.6, с.2332-2344, 1977.
- [6] Gitsu D., Konopko L. and Nikolaeva A. Pressure-dependent thermopower of individual Bi nanowires. Appl. Phys.Lett., v. 86, p. 10210, 2005.
- [7] Chambers R.G. The conductivity of thin wires in a magnetic field. Proc. Roy. Soc., vol. 202 A, p.378-394, 1950.
- [8] Mac – Donald D.K., Sarginson K. Size effect variation of the electrical conductivity of metals. Proc.Roy.Soc., vol.203 A, p. 223 – 240, 1950.
- [9] Lin Y.M., Sun X.Z., Dresselhaus M.S. Theoretical investigation of thermoelectric transport properties of cylindrical Bi nanowires. Phys. Rev. B 62, p.4610-4623, 2000.
- [10] Sun X., Zhang Z., Dresselhaus M.S. Theoretical modeling of thermoelectricity in Bi nanowires. Applied Physics Letters, v. 74, nr. 26, p. 4005-4007, 1999.
- [11] Долма В.А. Кинетические и квантовые осцилляционные эффекты у тонких нитей сплавов на основе висмута. Диссерт. на соискание ученой степени канд. физ.-мат. наук. Кишинев, 1987. 335 с.
- [12] Кайданов В.И., Регель А.Р. О влиянии толщины пленок висмута на их электрические свойства. ЖЭТФ, т. 28, с. 402, 1958.