

PACS numbers: 72.20.Mу, 73.43.Qt, 73.50.Jt, 73.61.At, 73.63.Bd, 81.07.Bc, 81.15.Ef

Гальваномангнитные свойства тонких пленок висмута, легированного теллуром

Д. С. Орлова, Е. И. Рогачева

*Национальный технический университет
«Харьковский политехнический институт»,
ул. Фрунзе, 21,
61002 Харьков, Украина*

Установлено, что, используя метод термического испарения в вакууме кристаллов висмута, легированного теллуром, на подложки из слюды, можно не только реализовать донорное действие теллура в тонкопленочном состоянии, но и осуществить более глубокое легирование висмута, чем в объемном кристалле. Показано, что подвижность носителей заряда (электронов) в пленках уменьшается по сравнению с объемным кристаллом, что естественно связать как с ростом концентрации электронов, так и с увеличением вклада поверхностного рассеяния в тонкопленочном состоянии. На основе анализа магнитополевых зависимостей коэффициента Холла и магнетосопротивления установлено, что для пленок Вi, легированного Те, и для кристаллов Вi с содержанием 0,5 ат.% Те в интервале значений магнитной индукции 0,1–1,0 Тл магнитное поле можно считать слабым. Полученные результаты могут быть использованы при изготовлении низкоразмерных структур на основе висмута с контролируемой концентрацией электронов.

Встановлено, що, використовуючи метод термічного випаровування у вакуумі кристалів бісмуту, легованих телюром, на підложжя з лосняку, можна не тільки реалізувати донорну дію телюру в тонкоплівковому стані, але й здійснити глибше легування бісмуту, ніж в об'ємному кристалі. Показано, що рухливість носіїв заряду (електронів) у плівках зменшується в порівнянні з об'ємним кристалом, що пов'язане як із зростанням концентрації електронів, так і зі збільшенням внеску поверхневого розсіювання у тонкоплівковому стані. На основі аналізу магнетопольових залежностей Голлового коефіцієнта і магнетопору встановлено, що для плівок Вi, який легований Те, і для кристалів Вi із вмістом 0,5 ат.% Те у інтервалі значень магнетної індукції 0,1–1,0 Тл магнетне поле можна вважати слабким. Одержані результати можуть бути використані при виготовленні низькорозмірних структур на основі бісмуту з контрольованою концентрацією електронів.

As revealed, using method of thermal evaporation in vacuum for deposition of Bi crystals doped with Te on mica substrates, one can provide donor action of Te in thin-film state and reach deeper alloying of Bi than that in bulk crystal. As shown, the mobility of charge carriers (electrons) in thin films is lower than that for bulk crystals. It may be conditioned by both the growth of electrons' concentration and the increase of input of surface scattering in the thin-film state. Magnetofield dependences of Hall coefficient and magnetoresistance are analyzed, and conclusion is made that magnetic field in region of 0.1–1.0 T can be considered as weak for thin films of Bi doped with Te and for Bi crystals with 0.5 at.% Te content. These results can be used for fabrication of bismuth-based low-dimensional structures with controlled concentration of electrons.

Ключевые слова: висмут, пленка, теллур, коэффициент Холла, магнетосопротивление, слабое магнитное поле.

(Получено 12 ноября 2008 г.)

1. ВВЕДЕНИЕ

Полуметалл висмут благодаря своим уникальным электронным свойствам (аномально высокие значения подвижности и средней длины свободного пробега, малая эффективная масса и др.) является чрезвычайно удобным объектом для наблюдения и исследования квантовых размерных эффектов [1]. Несмотря на чрезвычайно большое количество работ, посвященных изучению структуры и физических свойств кристаллов и тонких пленок висмута, кинетические свойства висмута в тонкопленочном состоянии продолжают изучаться, что стимулируется в настоящее время как интенсивным развитием нанофизики и нанотехнологий, так и предсказанными перспективами повышения термоэлектрической эффективности в низкоразмерных структурах на основе Bi [2].

Одним из важнейших параметров, используемых при оптимизации термоэлектрических свойств материала, является концентрация носителей заряда, существенно влияющая на значения таких характеристик как электропроводность, коэффициент Зеебека и теплопроводность, определяющих термоэлектрическую добротность материала [3]. Основным методом изменения концентрации носителей заряда остается на сегодняшний день введение в матрицу (кристалл или тонкопленочный объект) электроактивных примесей. Введение примесей в тонкие слои различных материалов наиболее часто (особенно при использовании метода молекулярно-лучевой эпитаксии) осуществляется путем подпыления легирующего компонента из отдельного источника и концентрация носителей заряда регулируется при этом изменением температуры этого источника [4].

Теллур принадлежит к числу основных донорных примесей в Bi,

введение которой позволяет управлять концентрацией электронов и, соответственно, гальваномагнитными, термоэлектрическими и другими свойствами [5, 6]. Известно, что введение теллура $\cong 0,5$ ат.% в кристалл висмута обеспечивает достижение концентрации носителей (электронов) $\cong (5,6 \pm 0,3) \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ [7].

Цель работы — исследовать возможность получения пленок висмута, легированных теллуrom, методом термического испарения кристаллов висмута, легированных теллуrom, и сопоставить концентрации и подвижности носителей заряда в массивном и тонкопленочном состояниях.

Известно, что определение концентрации и подвижности носителей заряда следует проводить в слабых магнитных полях, когда сила Лоренца незначительно влияет на движение носителей заряда и гальваномагнитные эффекты в однородной среде зависят в основном от доминирующих механизмов рассеяния [8]. В интервале слабых магнитных полей коэффициент Холла не зависит от величины магнитной индукции: $R_H \cong \text{const}$, а изменение магнетосопротивления описывается квадратичной зависимостью: $\Delta\rho/\rho \propto B^2$. В качестве критериев слабого и сильного поля обычно используют величину μB (μ — подвижность носителей заряда, B — индукция магнитного поля): для слабого поля $\mu B \ll 1$, а для сильного поля $\mu B \gg 1$.

Ввиду высоких значений подвижности электронов в кристаллах Bi область слабого магнитного поля даже при комнатной температуре ограничена значениями магнитной индукции $B \cong 0,1$ Тл [9]. Можно ожидать, что введение примеси Te , а также увеличение вклада поверхностного рассеяния в пленках Bi по сравнению с кристаллами Bi , приведет к снижению подвижности носителей заряда и, соответственно, к расширению области слабого магнитного поля.

Поскольку для правильной интерпретации результатов гальваномагнитных измерений необходимо знать границу слабого магнитного поля, одной из задач настоящей работы было получение магнитополевых зависимостей кинетических коэффициентов.

2. МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Шихтой для получения тонких пленок служили поликристаллы висмута, содержащие 0,5 ат.% Te , полученные методом прямого сплавления Bi и Te высокой степени чистоты (99,999%) в эвакуированных до $\cong 10^{-3}$ Па кварцевых ампулах, выдержки расплава при температуре ~ 800 К в течение 6 часов с применением вибрационного перемешивания и последующей закалки из жидкого состояния на воздухе.

Пленки толщиной $d = 150$ нм были получены методом термического испарения шихты $\text{Bi}_{99,5}\text{Te}_{0,5}$ из вольфрамовых лодочек в безмасляном вакууме (10^{-5} – 10^{-6} Па) и последующей конденсации на

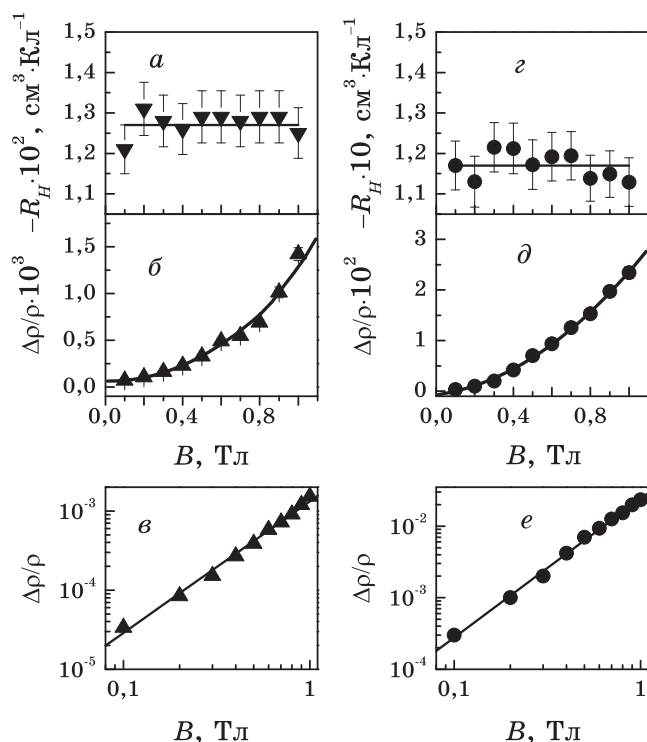


Рис 1. Зависимости коэффициента Холла R_H и магнетосопротивления $\Delta\rho/\rho$ от величины индукции магнитного поля для пленок висмута, легированного теллуrom (а, б, е), и массивного поликристалла $\text{Bi}_{99,5}\text{Te}_{0,5}$ (z, d, e).

поверхность (111) слюды, находящейся при температуре 380 К. Скорость роста пленки составляла 0,1–0,3 нм/сек. Толщины пленок измерялись с помощью предварительно откалиброванного кварцевого резонатора.

Измерения коэффициента Холла R_H , магнетосопротивления $\Delta\rho/\rho$ и электропроводности σ проводили при комнатной температуре методом постоянного магнитного поля и постоянного тока через образец в интервале магнитных полей 0,1–1,0 Тл. В качестве контактов использовали серебряную пасту. Магнитное поле направлялось перпендикулярно поверхности пленки. Погрешность измерений R_H и σ не превышала $\pm 5\%$. Холловская подвижность электронов μ_H определялась по формуле $\mu_H = R_H \sigma$.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рисунке 1 представлены магнитополевые зависимости коэффициента Холла и магнетосопротивления, полученные для тонкой

ТАБЛИЦА. Кинетические параметры висмута, легированного теллуром.

$\text{Bi}\langle\text{Te}\rangle$	$\sigma, \text{ Ом}\cdot\text{см}^{-1}$	$R_H \cdot 10^2, \text{ см}^3\cdot\text{Кл}^{-1}$	$\mu, \text{ см}^2\cdot\text{В}\cdot\text{с}^{-1}$	$n \cdot 10^{-19}, \text{ см}^{-3}$	$\Delta\rho/\rho$
объемный кристалл	4200±210	11,7±0,6	490±25	5,6±0,3	0,0234
тонкая пленка	7500±375	1,27±0,06	100±5	48,0±2,9	0,0014

пленки $\text{Bi}\langle\text{Te}\rangle$ и для исходного поликристалла висмута, содержащего 0,5 ат.% Te . Из рисунка видно, что R_H сохраняет практически постоянное значение во всем интервале значений магнитной индукции. Что касается магнетосопротивления, то построение в логарифмическом масштабе зависимости $\Delta\rho/\rho(B)$ показало, что зависимость близка к квадратичной.

Наблюдаемый характер зависимости $\Delta\rho/\rho(B)$ и $R_H(B)$ показывает, что для пленок и для кристаллов Bi , легированного Te , магнитное поле вплоть до значений $B \approx 1$ Тл можно считать слабым. Заметим, что для кристаллов нелегированного висмута граница слабого поля не превышает 0,1–0,15 Тл [9]. Так как расширение области слабого магнитного поля до 1 Тл для висмута, легированного теллуром, происходит и в массивном, и в тонкопленочном состоянии, можно предположить, что именно донорное действие примеси теллура приводит к резкому снижению подвижности основных носителей заряда и расширению области слабого магнитного поля.

Измерения коэффициента Холла показали, что полученный кристалл висмута, легированный теллуром ($\text{Bi}_{99,5}\text{Te}_{0,5}$) обладал электронным типом проводимости. Концентрация носителей заряда в этом кристалле составляла $n = (5,6 \pm 0,3) \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$, а холловская подвижность $\mu_H = (400 \pm 20) \text{ см}^2 \cdot \text{В} \cdot \text{с}^{-1}$.

Учитывая, что в полуметалле Bi основными носителями заряда являются электроны и дырки, концентрации которых равны ($n = p$), коэффициент Холла для Bi должен рассчитываться по формуле для проводника с двумя сортами носителей:

$$R_H = \frac{1}{ne} \frac{\mu_p - \mu_n}{\mu_p + \mu_n}, \quad (1)$$

где e — заряд электрона; μ_p и μ_n — подвижности дырок и электронов соответственно, n — их концентрация. Отрицательный знак R_H чистого Bi обычно связывают с тем, что при равной концентрации электронов и дырок подвижность электронов превышает подвижность дырок \cong в три раза [10].

Однако ситуация изменяется в случае висмута, легированного теллуром.

Согласно [11], при содержании Te более $\cong 0,01$ ат.% электроны становятся основными носителями заряда в явлениях переноса, оп-

ределяя знак коэффициента Холла. Это дает основание использовать при определении концентрации электронов в полученных кристаллах и тонких пленках $\text{Vi}<\text{Te}>$, формулу для полупроводника с одним сортом носителей заряда (электронов):

$$R_H = \frac{1}{ne}. \quad (2)$$

Расчет концентрации носителей заряда в кристалле и в тонкой пленке $\text{Vi}<\text{Te}>$ с использованием формулы (2) показал, что концентрация электронов в пленке почти на порядок превышает значение n в исходной шихте $\text{Vi}_{99,5}\text{Te}_{0,5}$ (табл.). Это свидетельствует о том, что в тонкопленочном состоянии происходит более глубокое легирование висмута теллуром, чем в массивных кристаллах. Это можно связать с изменением условий термодинамического равновесия в тонкопленочном состоянии по сравнению с объемными кристаллами ввиду уменьшения одного из размеров системы. Возможно, например, увеличение предельной растворимости Te в тонкопленочном состоянии, увеличение электрической активности примеси (Te), изменение механизмов дефектообразования и т.д.

В то же время рассчитанная подвижность носителей заряда (электронов) в пленках уменьшается \cong в 5 раз по сравнению с объемным кристаллом, что естественно связать как с ростом концентрации электронов, так и с увеличением вклада поверхностного рассеяния. В табл. для сравнения приведены значения концентрации и подвижности электронов в кристаллах висмута, легированного теллуром, и полученных из них тонких пленках.

4. ВЫВОДЫ

Установлено, что, используя метод термического испарения в вакууме кристаллов висмута, легированного теллуром, можно не только реализовать донорное действие теллура в тонкопленочном состоянии, но и осуществить более глубокое легирование висмута, чем в объемном кристалле.

Показано, что подвижность носителей заряда (электронов) в пленках уменьшается по сравнению с объемным кристаллом, что естественно связать как с ростом концентрации электронов, так и с увеличением вклада поверхностного рассеяния в тонкопленочном состоянии.

На основе анализа магнитополевых зависимостей коэффициента Холла и магнетосопротивления установлено, что для пленок Vi , легированного Te , в интервале значений магнитной индукции 0,1–1,0 Тл магнитное поле можно считать слабым.

Полученные результаты могут быть использованы при изготовлении низкоразмерных структур на основе висмута с контролируе-

мой концентрацией электронов.

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Л. А. Фальковский, *УФН*, **94**: № 1: 3 (1968).
2. M. S. Dresselhaus et al., *Semiconductors and Semimetals: Recent Trends in Thermoelectric Materials Research. III* (Ed. T. M. Tritt) (San Diego, CA: Academic Press: 2001), p. 1.
3. Л. И. Анатычук, *Термоэлектричество. Термоэлектрические преобразователи энергии* (Киев–Черновцы: Институт термоэлектричества: 2003), т. 2.
4. G. Springhols, *MBE of IV–VI Heterostructures and Superlattices in Lead Chalcogenides: Physics and Applications* (Ed. D. Khakhlov) (New York: Taylor and Francis: 2002), p. 124.
5. Г. А. Иванов, А. Р. Регель, *ЖТФ*, **25**: № 1: 49 (1955).
6. Д. В. Гицу, Г. А. Иванов, *ФТТ*, **2**, № 7: 1464 (1960).
7. Д. С. Орлова, Е. І. Рогачова, *Нові технології. Науковий вісник КУЕІТУ*, **1**, вип. 19: 52 (2008).
8. А. А. Абрикосов, *Основы теории металлов* (Москва: Наука: 1987).
9. Г. А. Иванов, А. М. Попов, *ФТТ*, **5**, № 5: 1428 (1963).
10. Ю. И. Равич, А. В. Рапопорт, *ФТТ*, **34**, № 6: 1801 (1992).
11. В. Д. Каган, Н. А. Редько, Н. А. Родионов, В. И. Польшин, О. В. Зотова, *ФТТ*, **46**, № 8: 1372 (2004).