

## ВЛИЯНИЕ ЭФФЕКТИВНОГО ПАРАМЕТРА РАССЕЯНИЯ НА МАССУ ПЛОТНОСТИ СОСТОЯНИЙ И ПОДВИЖНОСТЬ В ТВЕРДЫХ РАСТВОРАХ НА ОСНОВЕ ХАЛЬКОГЕНИДОВ ВИСМУТА И СУРЬМЫ

Кутасов В. А., Лукьянова Л. Н.

Определены температурные зависимости эффективной массы плотности состояний  $m/m_0$  и подвижности  $\mu_0$  в твердых растворах на основе  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  с соединениями  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ ,  $\text{Sb}_2\text{Se}_3$ ,  $\text{Bi}_2\text{S}_3$ ,  $\text{In}_2\text{Te}_3$  в соответствии с многодолинной моделью зонной структуры. Величины  $m/m_0$  и  $\mu_0$  получены на основании экспериментальных данных по температурным зависимостям гальваномагнитных коэффициентов, измеренных в слабых магнитных полях (компонентов тензоров эффекта Холла  $\rho_{ijk}$  и магнитосопротивления  $\rho_{ijkl}$ ) совместно с электропроводностью  $\sigma$  и коэффициентом термоэдс  $\alpha$ . При расчете холловской концентрации носителей  $n$  учитывался эффективный параметр рассеяния  $r_s$ , вычисленный из данных по термоэдс  $\alpha$  и параметру вырождения  $\beta$ . Учет эффективного параметра рассеяния  $r_s$  позволяет получить близкие значения для концентраций носителей заряда, определенных в сильном магнитном поле и с учетом  $r_s$  в слабом магнитном поле, в отличие от данных, полученных для акустического механизма рассеяния при  $r = -0.5$ . Установлены концентрационные зависимости  $m/m_0$  и  $\mu_0$  для различных составов исследованных твердых растворов.

Эффективная масса плотности состояний  $m/m_0$  и подвижность носителей заряда  $\mu_0$  в твердых растворах на основе теллурида висмута ( $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ ) с соединениями  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$ ,  $\text{Sb}_2\text{Se}_3$ ,  $\text{Bi}_2\text{S}_3$ ,  $\text{In}_2\text{Te}_3$  определены из измерений гальваномагнитных коэффициентов (компонентов тензора эффекта Холла  $\rho_{ijk}$  и магнитосопротивления  $\rho_{ijkl}$ ), измеренных в слабых магнитных полях совместно с удельным сопротивлением  $\rho_{ij}$  и коэффициентом термоэдс  $\alpha$  на основе многодолинной модели зонной структуры [1, 2].

Концентрация носителей заряда в случае таких анизотропных материалов, какими являются рассматриваемые твердые растворы, определялась с учетом параметра анизотропии  $B_{\perp}$  в виде

$$n = AB_{\perp}/e\rho_{123}, \quad (1)$$

где  $A$  — холл-фактор,  $B_{\perp}$  — параметр анизотропии, определяемый в соответствии с многодолинной моделью как

$$B_{\perp} = \left[ \left( \frac{\rho_{11}\rho_{1133}}{\rho_{123}^2} + 1 \right) \beta \right]^{-1}. \quad (2)$$

Здесь  $\beta = I_1^2/I_0I_2$ ,  $I_n$  — изотропные множители в выражениях электропроводности ( $I_0$ ), холловской проводимости ( $I_1$ ) и магнитопроводности ( $I_2$ ):

$$I_n = \left( \frac{e}{m} \right)^n \frac{e^2}{3\pi^2 m} \left( \frac{2m}{\pi^2} \right)^{3/2} \frac{1}{|a_{ij}|^{1/2}} \int_0^{\infty} \tau^{n+1} \varepsilon^{3/2} \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} |d\varepsilon, \quad (3)$$

где  $|a_{ij}|$  — детерминант, составленный из компонентов тензора обратных эффективных масс  $\bar{a}$ :

$$|a_{ij}| = a_{11}(a_{22}a_{33} - a_{23}^2). \quad (4)$$

Для изотропного времени релаксации  $\tau$ , когда  $\tau = a\varepsilon^r$ , где  $a$  — скаляр, интегралы  $I_n$  сводятся к интегралам Ферми

$$F_r(\eta) = \int_0^{\infty} \frac{x^r}{e^{x-\eta}} dx, \quad (5)$$

и для  $\beta$  имеем

$$\beta = \frac{(2r + 3/2)^2 F_{2r+1/2}^2(\eta)}{(r + 3/2)(3r + 3/2) F_{r+1/2}(\eta) F_{3r+1/2}(\eta)}. \quad (6)$$

Расчет интегралов Ферми  $F(r, \eta)$  [3] проводился по методу Симпсона, усовершенствованному в работе [4], когда интеграл представляется в виде

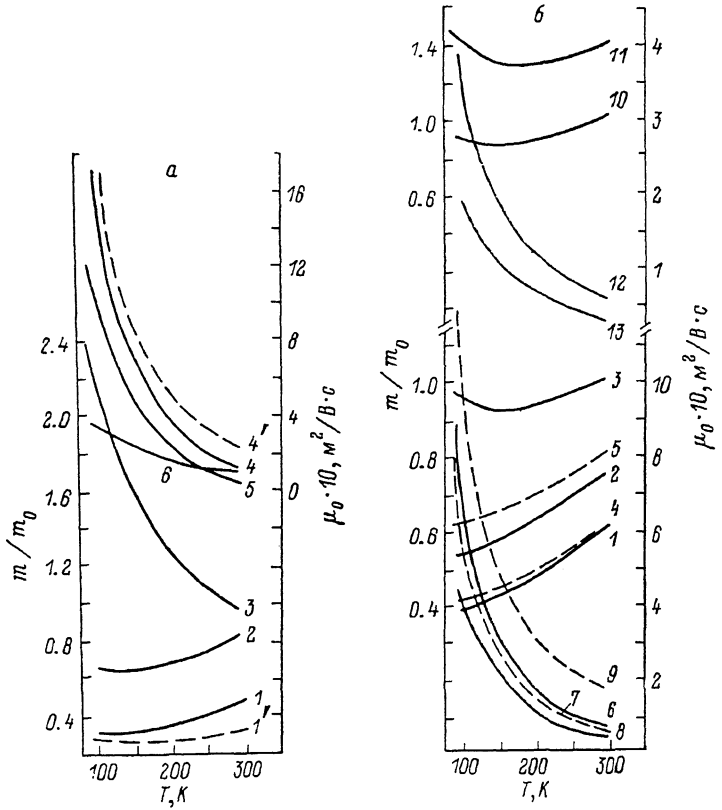


Рис. 1. Температурные зависимости эффективной массы  $m/m_0$  и подвижности  $\mu_0$  в  $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$  и  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$  с учетом  $r_x$ .

а)  $n\text{-Bi}_2\text{Te}_3$ : 1-3 —  $m/m_0$ ; 4-6 —  $\mu_0$ . Штриховые линии: 1' —  $m/m_0$ ; 4' —  $\mu_0$ ; ( $r = -0.5$ );  $n \cdot 10^{19}$ ,  $\text{см}^{-3}$ : 1', 4' — 0.25; 1, 4 — 0.3; 2, 5 — 0.75; 3, 6 — 9.2. б)  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$ ,  $x = 0.12$ : 1-3 —  $m/m_0$ ; 7-9 —  $\mu_0$ ; ( $r_x$ ); 4, 5 —  $m/m_0$ ; 6-8 —  $\mu_0$ ; ( $r = -0.5$ );  $n \cdot 10^{19}$ ,  $\text{см}^{-3}$ : 1, 6 — 0.15; 2 — 0.5; 3, 8 — 2.9; ( $r = -0.5$ );  $n \cdot 10^{19}$ ,  $\text{см}^{-3}$ : 4, 7 — 0.18; 5, 9 — 0.45.  $x = 0.3$ : 10, 11 —  $m/m_0$ ; 12, 13 —  $\mu_0$ ; ( $r_x$ );  $n \cdot 10^{19}$ ,  $\text{см}^{-3}$ : 10, 12 — 0.4; 11, 13 — 1.8.

суммы значений подынтегральных функций в точках, распределенных неравномерно на интервале интегрирования с учетом характера изменения подынтегральной функции, что позволяет повысить точность вычислений.

В случае акустического механизма рассеяния, который обычно считают преобладающим в  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  и твердых растворах [5, 6] в исследуемом температурном интервале 77—300 К, параметр рассеяния  $r = -0.5$ . Однако при обработке экспериментальных данных по гальваномагнитным эффектам при определении эффективной массы  $m/m_0$  и подвижности  $\mu_0$  в широкой области изменения концентраций носителей заряда для  $r = -0.5$  наблюдались увеличение  $\mu_0$  с ростом концентрации носителей и соответственно уменьшение  $m/m_0$ . Такие зависимости  $\mu_0$  от концентрации носителей заряда не могли быть объяснены с помощью обычных представлений о корреляции между числом рассеивающих

центров и величиной подвижности. Анализ температурных зависимостей коэффициента термоэдс  $\alpha(T)$  и параметра вырождения  $\beta(T)$ , изменения подвижности  $\mu_0$  и эффективной массы  $m/m_0$  в образцах с различными концентрациями носителей показал, что величина параметра рассеяния отличается от  $-0.5$ . Учет дополнительного рассеяния, обусловленного легирующими примесями и атомами второго компонента твердого раствора, не объяснял указанной совокупности экспериментальных данных, что привело к необходимости вве-

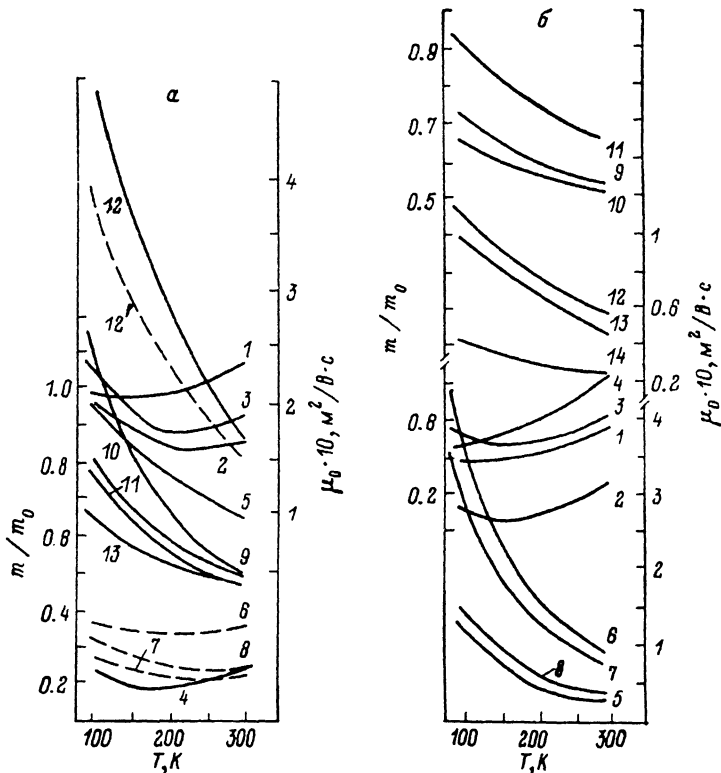


Рис. 2. Температурные зависимости эффективной массы  $m/m_0$  и подвижности  $\mu_0$  в  $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ ,  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{S}_x$  и  $\text{Bi}_{2-x}\text{In}_x\text{Te}_3$  с учетом  $r_s$ .

а)  $\text{Bi}_{2-x}\text{Sb}_x\text{Te}_{3-y}\text{Se}_y$ : 1-5 —  $m/m_0$ ; 9-13 —  $\mu_0$ ; ( $r_s$ ); 6-8 —  $m/m_0$ ; 12 —  $\mu_0$ ; ( $r = -0.5$ ).  $x$  и  $y$ : 1, 6, 9 — 0.08 и 0.12; 2, 3, 8, 10, 11 — 0.2 и 0.3; 4, 5, 7, 12, 13 — 0.4 и 0.6. ( $r_s$ );  $n \cdot 10^{-19}$ ,  $\text{см}^{-3}$ : 1, 9 — 2.0; 2, 10 — 1.6; 3, 11 — 2.8; 4, 12 — 0.08; 5 — 1.9; ( $r = -0.5$ );  $n \cdot 10^{-19}$ ,  $\text{см}^{-3}$ : 6 — 0.35; 7 — 0.1; 8 — 0.45. б)  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{S}_x$ : 1-4 —  $m/m_0$ ; 5-8 —  $\mu_0$ ;  $x$ : 1, 4, 5, 8 — 0.21; 2, 3, 6, 7 — 0.12;  $n \cdot 10^{-19}$ ,  $\text{см}^{-3}$ : 1, 8 — 0.42; 2, 6 — 0.5; 3, 7 — 1.1; 4, 5 — 2.6. ( $r_s$ );  $\text{Bi}_{2-x}\text{In}_x\text{Te}_3$ : 9-11 —  $m/m_0$ ; 12-14 —  $\mu_0$ ;  $x$ : 9, 10, 12, 13 — 0.06; 11, 14 — 0.12.  $n \times 10^{-19}$ ,  $\text{см}^{-3}$ : 9, 13 — 0.82; 10, 12 — 0.23; 11, 14 — 1.8.

дения эффективного параметра рассеяния  $r_s$ , который был рассчитан вместе с приведенным уровнем Ферми  $\eta$  из выражений для термоэдс

$$\alpha = \frac{k}{e} \left[ \frac{(r + 5/2) F_{r+3/2}(\eta)}{(r + 3/2) F_{r+1/2}(\eta)} - \eta \right] \quad (7)$$

и параметра вырождения  $\beta$  [формула (6)], по методу прямого поиска [7], когда  $r$  и  $\eta$  являлись независимыми варьируемыми параметрами. При этом величины  $\beta$  определялись из данных по гальваномангнитным эффектам при расчете параметров поверхности постоянной энергии в рамках многодолинной модели энергетического спектра [8].

Эффективная масса плотности состояний  $m/m_0$  и подвижность носителей заряда  $\mu_0$  были получены по известным формулам [9], применимым для полупроводника в области примесной проводимости при произвольном вырождении:

$$n = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{2\pi m_0 k}{h^2} \right)^{3/2} T^{3/2} F_{1/2}(\eta) \left( \frac{m}{m_0} \right)^{3/2}, \quad (8)$$

$$\sigma = ne\mu, \quad \mu = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{F_{r+1/2}(\eta)}{\Gamma(r+3/2) F_{1/2}(\eta)} \mu_0 \quad (9)$$

где  $\Gamma(t)$  — гамма-функция вида

$$\Gamma(t) = \frac{1}{t} \int_0^{\infty} x^t \exp(-x) dx = \frac{\Gamma(t+1)}{t} \quad (10)$$

в общем случае от любого нецелого аргумента рассчитывалась аналогично интегралам Ферми (5) в соответствии с работой [3].

На рис. 1, 2 представлены температурные зависимости  $m/m_0$  и  $\mu_0$  для  $r_s$  в  $n$ - $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  и твердых растворах. Для сравнения на тех же рисунках приведены значения  $m/m_0$  и  $\mu_0$ , полученные при  $r = -0.5$ . Близкие значения  $m/m_0$  и  $\mu_0$  для  $r_s$  и  $r = -1/2$  были получены только при низких концентрациях носителей в образцах  $n$ - $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  (рис. 1, а, б, кривые 1, 1', 4, 4'),  $\text{Bi}_2\text{Te}_{2.88}\text{Se}_{0.12}$  (рис. 1, б, кривые 1, 4, 6, 7) и  $\text{Bi}_{1.6}\text{Sb}_{0.4}\text{Te}_{2.4}\text{Se}_{0.6}$  (рис. 2, а, кривые 4, 7, 12, 12').

Учет  $r_s$  при расчете эффективной массы привел к увеличению  $m/m_0$  с ростом концентрации носителей в отличие от зависимости  $m/m_0$  от  $n$  при  $r = -0.5$ , где для высоких концентраций носителей значения  $m/m_0$  уменьшались, вследствие того что концентрации носителей значительно отличались от действительных значений  $n$ , определенных в сильном магнитном поле (см. таблицу).

Увеличение  $m/m_0$  с ростом  $n$  наблюдается как в  $n$ - $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ , так и в твердых растворах при сравнении образцов с одинаковым содержанием второго компонента, что можно связать при анализе экспериментальных данных в рамках однозонной модели с влиянием дополнительной подзоны, характеризующейся большей эффективной массой [8, 9].

С увеличением содержания второго компонента в твердых растворах  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$  и  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{S}_x$  эффективная масса возрастает в образцах с близкими концентрациями носителей заряда (рис. 1, б, кривые 2, 10; рис. 2, б, кривые 1, 2), при этом  $m/m_0$  в твердом растворе  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$  больше, чем в  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{S}_x$ . Такие изменения  $m/m_0$  в зависимости от состава твердого раствора согласуются с величиной ширины запрещенной зоны  $E_g$  [6, 10], так как с ростом  $x$  в твердом растворе величины  $E_g$  возрастают, и  $E_g$  больше в  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$ , чем в  $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{S}_x$ .

Температурные зависимости эффективной массы определяются тепловым расширением кристаллической решетки, вследствие чего эффективная масса возрастает с температурой, и электрон-фононным взаимодействием, приводящим к уменьшению  $m/m_0$ . Преимущественное влияние одной из указанных причин в области температур ниже или выше температуры Дебая ( $T_D = 155$  К для  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ ), где наблюдался перегиб для ряда температурных зависимостей  $m/m_0$  (рис. 1, б, кривая 3; рис. 2, а, кривые 1, 3, 4; рис. 2, б, кривые 2, 3), может приводить как к возрастанию, так и к уменьшению эффективной массы с температурой.

При определении подвижности носителей  $\mu_0$  (рис. 1, 2) учет  $r_s$  приводит к уменьшению  $\mu_0$  и величин  $d \lg \mu_0(T)/dT$  с ростом  $n$  вследствие увеличения числа рассеивающих центров. Особенно заметное уменьшение  $\mu_0$  наблюдалось в образцах с концентрациями  $n > (2 \div 3) \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$  в отличие от  $\mu_0$  для  $r = -0.5$ , что связано с большой погрешностью в определении концентрации носителей для  $r = -0.5$ , как и при расчете эффективной массы.

Значения  $\mu_0$  уменьшаются по мере увеличения размеров искажений в кристаллической решетке теллурида висмута, которые обусловлены замещениями атомов при образовании твердых растворов. В твердых растворах изоморфных

Концентрации носителей заряда в  $n$ - $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ , полученные при учете эффективного параметра рассеяния  $r_s$  для акустического механизма рассеяния ( $r = -0.5$ ) и из данных измерений эффекта Холла в сильном магнитном поле [10]

№ п. п.	$n \cdot 10^{-16} \text{ см}^{-3}$		
	$r_s$	$r = -0.5$	сильное магнитное поле
1	0.65	0.42	0.73
2	0.85	0.55	0.97
3	1.45	0.65	1.84
4	1.65	0.75	1.92

соединений ( $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{Se}_x$ ) величины  $\mu_0$  при близких концентрациях носителей значительно больше, чем в материалах, образованных неизоморфными соединениями ( $\text{Bi}_2\text{Te}_{3-x}\text{S}_x$ ,  $\text{Bi}_{2-x}\text{In}_x\text{Te}_3$ ).

#### Л и т е р а т у р а

- [1] Drabble T. R., Groves R. D., Wolfe R. // Proc. Phys. Soc. 1958. V. 71. N 3. P. 430—443.
- [2] Saywood L. P., Miller G. R. // Phys. Rev. 1970. V. 2. N 8. P. 3210—3220.
- [3] Кутасов В. А., Лукьянова Л. Н. // Алгоритмы и математическое обеспечение для физических задач. Л., 1981. С. 63—74.
- [4] Агеев М. И., Алик В. П., Марков Ю. И. // Библиотека алгоритмов 1516—2006. М., 1981. В. 4. С. 60—73.
- [5] Ефимова Б. А., Кельман Б. В., Стельбанс Л. С. // ФТТ. 1962. Т. 4. В. 1. С. 152—156.
- [6] Гольцман Б. М., Кудинов В. А., Смирнов И. А. Полупроводниковые термоэлектрические материалы на основе  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$ . М., 1972. 320 с.
- [7] Hoke R., Jewes T. A. // J. ACH. 1981. V. 8. N 2. P. 212—229.
- [8] Кутасов В. А., Лукьянова Л. Н. // ФТТ. 1982. Т. 24. В. 2. С. 402—405.
- [9] Asworth H. A., Rayne J. A. // Phys. Rev. B. 1971. V. 3. N 8. P. 2646—2661.
- [10] Бекдурдыев Ч. Д., Гольцман Б. М., Кутасов В. А., Петров А. В. // ФТТ. 1974. Т. 16. В. 7. С. 2121—2122.

Физико-технический институт  
им. А. Ф. Иоффе АН СССР  
Ленинград

Получена 23.05.1988  
Принята к печати 20.12.1988