

# Гальваномагнитные свойства неравновесных твердых растворов замещения $Al_{1-x}Si_x$

© Н.Е. Случанко, В.В. Глушков, С.В. Демишев, М.В. Кондрин, Н.А. Самарин,  
В.В. Бражкин, И. Браунсераде, В.В. Мощалков

Институт общей физики Российской академии наук,  
117942 Москва, Россия

E-mail: glushkov@lt.gpi.ru

(Поступила в Редакцию 2 июня 1998 г.)

Проведено исследование гальваномагнитных характеристик твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  ( $x < 12$  at.%) в широком диапазоне температур (1.8–290 К) и магнитных полей (до 15 Т). В окрестности границы абсолютной неустойчивости ( $x < 8.5$  at.%) соединений ряда  $Al_{1-x}Si_x$  обнаружена аномалия концентрационной зависимости коэффициента Холла  $R_H$  ( $x, T = 290$  К). Изменение коэффициента Холла и магнитосопротивления в ряду  $Al_{1-x}Si_x$  при низких ( $T < 77$  К) температурах анализируется в рамках моделей, учитывающих эффекты анизотропии рассеяния электронов проводимости.

Синтезированные закалкой в условиях высокого давления (до 10 GPa) неравновесные твердые растворы  $Al_{1-x}Si_x$  обнаруживают значительные изменения физических свойств, обусловленные эффектами замещения [1,2]. Авторами [1] было показано, что увеличение до 20 at.% концентрации кремния, растворенного в ГЦК матрице Al, приводит к росту температуры перехода в сверхпроводящее состояние вплоть до значений 11 К (для поликристаллического Al  $T_c = 1.18$  К [3]). Рост  $T_c$  на порядок величины в непосредственной окрестности решеточной неустойчивости [4] сопровождается заметным смягчением фононного спектра твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  [5]. Указанные особенности, наблюдающиеся для соединений с простой кристаллической структурой, позволяют рассматривать ГЦК твердые растворы  $Al_{1-x}Si_x$  в качестве удобного модельного объекта для изучения природы усиления сверхпроводимости в окрестности решеточной неустойчивости.

Следует подчеркнуть актуальность исследования данной проблемы, особенно в связи с открытием в последнее время новых классов сверхпроводящих соединений: оксидных высокотемпературных сверхпроводников, органических металлов и сверхпроводящих фуллеренов, в которых в большинстве случаев близость к неустойчивости кристаллической структуры является определяющим фактором для появления и усиления сверхпроводимости.

Проведенное сравнительно недавно [6,7] исследование ряда физических свойств модельных твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  позволило связать наблюдаемые изменения характеристик сверхпроводящего состояния в этих веществах со значительным усилением электрон-фононного взаимодействия вблизи решеточной неустойчивости. В то же время влияние существенно неравновесного состояния кремния в разупорядоченной матрице твердого раствора на характеристики носителей заряда до сих пор подробно не анализировалось.

Исследования разбавленных ( $x \leq 0.01$ ) твердых растворов на основе Al, выполненные в [8–12], показали, что поведение коэффициента Холла и магнитосопротивления

в слабых магнитных полях при низких температурах крайне чувствительно к характеру рассеяния носителей заряда на примесном потенциале и определяется спецификой растворенного элемента и типом дефектов кристаллической структуры, обусловленных замещением [8–12]. В случае системы Al(Si) разупорядочение кристаллической матрицы связано не только с хаотическим распределением примеси замещения, но и с локальными деформационными изменениями потенциала рассеяния. В связи с вышеизложенным исследование гальваномагнитных свойств твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  представляют интерес для изучения влияния разупорядочения ГЦК структуры, обусловленного как эффектами замещения Al кремнием, так и изменением параметров решетки в окрестности структурной неустойчивости. Дополнительный интерес связан с возможностью проведения анализа изменения параметров зоны проводимости и установления их корреляции с характеристиками системы в нормальном и сверхпроводящем состояниях при больших (до 20 at.%) концентрациях растворенного элемента.

Предварительные результаты исследований эффекта Холла в твердых растворах  $Al_{1-x}Si_x$  при гелиевой температуре были опубликованы в [13]. В настоящей работе представлены результаты комплексного исследования гальваномагнитных свойств твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  в широком диапазоне температур (1.6–290 К) в магнитных полях (до 15 Т).

## 1. Методика эксперимента

Образцы твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  с содержанием кремния до 11.5 at.% были синтезированы закалкой в условиях высокого давления (до 10 GPa) в камере типа "Тороид" [14]. Особенности синтеза, паспортизации и подготовки к измерениям образцов  $Al_{1-x}Si_x$  аналогичны описанным в [2,6–7]. Для сравнения исследуемых физических параметров в качестве реперного использовался образец Al чистоты 99.9%, подвергнутый термобариче-

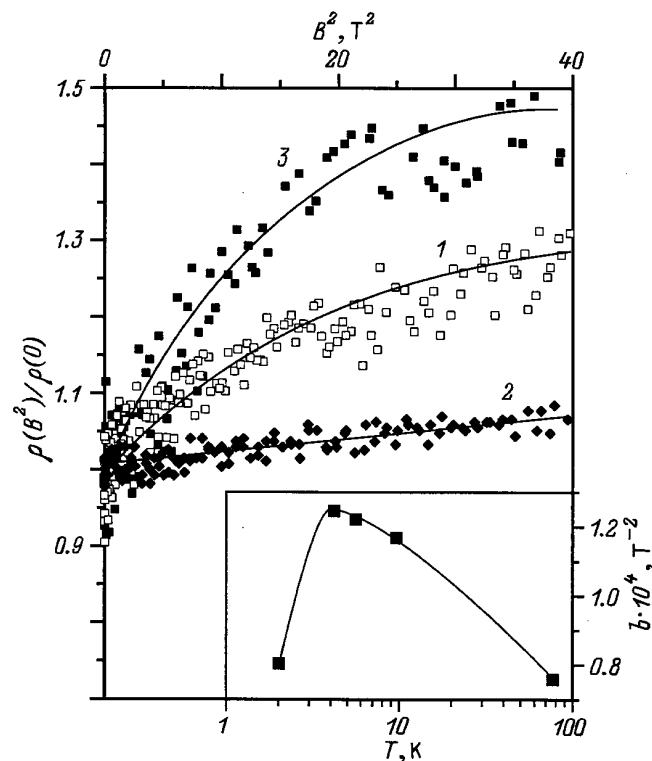
ской обработке при сходных с используемыми условиях синтеза.

Удельное сопротивление  $\rho$  и холловское напряжение  $U_H$  образцов, имеющих форму цилиндрических пластин, определялось в геометрии Ван-дер-Пау [15]. Использование автоматизированной экспериментальной установки для гальваномагнитных измерений позволило измерять параметры  $\rho$  и  $U_H$  с относительной погрешностью до 0.1%. Случайная ошибка определялась выбранной схемой измерений и составила 5–10% в зависимости от конкретных условий эксперимента.

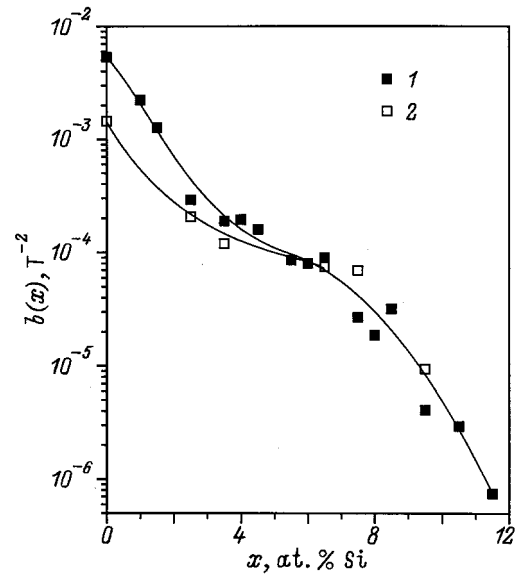
Для исследования полевых зависимостей использовались: сверхпроводящий соленоид с магнитным полем до 6 Т (интервал температур 1.6–20 К), установка "Соленид" ИОФ РАН — водоохлаждаемый магнит биттеровского типа, магнитное поле до 15 Т (4.2–77 К), и водоохлаждаемый электромагнит, магнитное поле до 1.3 Т (290 К). Подробное описание методики исследования гальваномагнитных свойств приведено в [16].

## 2. Экспериментальные результаты

Экспериментальные зависимости удельного сопротивления  $\rho$  от магнитного поля для составов ряда  $Al_{1-x}Si_x$ , измеренные при гелиевой температуре, представлены на рис. 1. В области малых магнитных полей магнитосо-



**Рис. 1.** Полевые зависимости магнитосопротивления барически обработанного Al (1) и твердого раствора  $Al_{0.965}Si_{0.035}$  в исходном (2) и отожженном (3) состояниях. На вставке представлена температурная зависимость коэффициента магнитосопротивления  $b = \frac{\Delta\rho}{\rho \cdot B^2}$  образца  $Al_{0.935}Si_{0.065}$ .



**Рис. 2.** Концентрационная зависимость коэффициента  $b(x)$  в ряду  $Al_{1-x}Si_x$  при 4.2 (1) и 77 К (2).

противление  $\Delta\rho(B)/\rho$  является квадратичной функцией внешнего магнитного поля. Для образцов  $Al_{1-x}Si_x$  с небольшим содержанием кремния заметна тенденция к насыщению при дальнейшем увеличении  $B$ . Так, зависимость  $\rho(B)$  барически обработанного Al, измеренная при гелиевой температуре (рис. 1, кривая 1), обнаруживает существенные отклонения от линейной в координатах  $\rho(B^2)$  зависимости в магнитных полях  $B > 3$  Т. Наблюдаемое поведение согласуется с зависимостью типа "кривой с насыщением", характерной для чистого Al [17] и разбавленных сплавов на его основе [10–12].

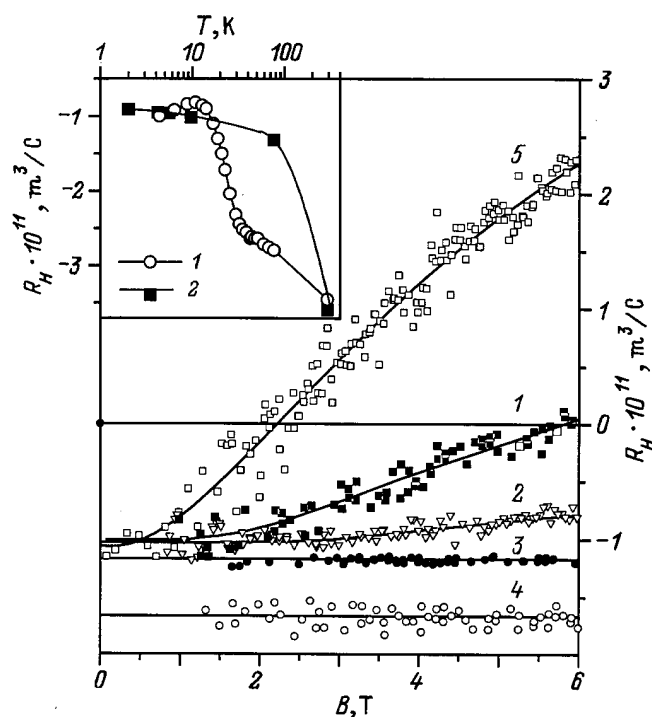
Для составов  $Al_{1-x}Si_x$  с  $x \geq 2$  at.% тенденции к насыщению на кривых  $\rho(B^2)$  не наблюдается во всем используемом диапазоне магнитных полей  $B < 15$  Т (рис. 1, кривая 2). При этом рост концентрации растворенного кремния приводит к значительному уменьшению амплитуды положительного магнитосопротивления. Коэффициент пропорциональности  $b(x) = \Delta\rho/(\rho \cdot B^2)$ , полученный из аппроксимации экспериментальных данных линейной зависимостью в координатах  $(\rho, B^2)$ , монотонно уменьшается при гелиевой температуре от  $1.26 \cdot 10^{-3} \text{ T}^{-2}$  для  $x = 1.5$  at.% до  $7.5 \cdot 10^{-7} \text{ T}^{-2}$  для  $x = 11.5$  at.% (рис. 2). При этом в области концентраций 3–7 at.% Si наблюдается заметное уменьшение скорости изменения коэффициента магнитосопротивления  $b(x)$  (рис. 2). Следует подчеркнуть, что указанный интервал составов  $x$  характеризуется лишь незначительными уменьшениями остаточного сопротивления в ряду  $Al_{1-x}Si_x$  [6], что позволяет связать наблюдаемое уменьшение скорости изменения параметра магнитосопротивления  $b(x)$  с уменьшением эффективности рассеяния электронов зоны проводимости на дефектах кристаллической структуры, обусловленных увеличением концентрации примеси замещения.

Отметим также, что отжиг ( $\sim 10$  min при  $T = 620$  K), инициирующий полный распад пересыщенных твердых растворов ряда  $Al_{1-x}Si_x$ , приводит к увеличению магнитосопротивления. Зависимость  $\rho(B^2)$  после отжига оказывается аналогичной поведению магнитосопротивления чистого алюминия и характеризуется тенденцией к насыщению в сильных магнитных полях (рис. 1, кривая 3).

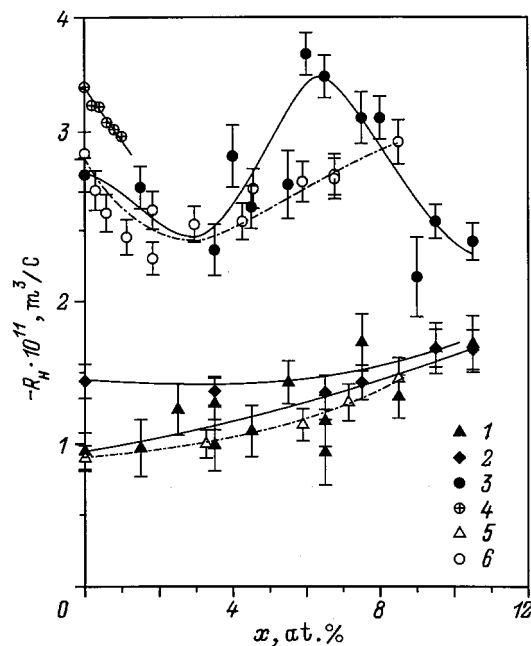
С ростом температуры выше гелиевой положительное магнитосопротивление также уменьшается за счет появления дополнительного канала рассеяния на фонах (вставка на рис. 1). Поведение магнитосопротивления с температурой в  $Al_{1-x}Si_x$  в целом подобно наблюдавшемуся ранее для разбавленных сплавов  $Al_{1-x}Ge_x$  ( $x < 0.005$ ) и  $Al_{1-x}Zn_x$  ( $x < 0.002$ ) [18]. В то же время следует отметить необычное уменьшение магнитосопротивления для образцов  $Al_{1-x}Si_x$  ( $x > 3$  at.%) при понижении температуры до 1.8 K.

Подчеркнем, что в отличие от зависимости, устанавливаемой правилом Колера (см., например, [8,10]), величина  $\Delta\rho(B, x)/\rho$  не является универсальной функцией отношения  $B/\rho(T, x, B = 0)$ , причем отклонения от указанной зависимости наиболее заметны в интервале составов  $0.02 < x < 0.08$ .

Результаты исследований коэффициента Холла  $R_H$  барически обработанного алюминия и твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  при гелиевой температуре в магнитных полях



**Рис. 3.** Зависимости  $R_H(B)$  для твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  с  $x = 0$  (1), 1.5 (2), 4.5 (3) и 9.5 at.% (4), а также для отожженного состояния образца  $Al_{0.935}Si_{0.065}$  (5). На вставке приведены температурные зависимости коэффициента Холла чистого поликристаллического Al [20] (1) и твердого раствора  $Al_{0.935}Si_{0.065}$  (2).



**Рис. 4.** Концентрационная зависимость коэффициента Холла  $R_H$  для твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  при  $T = 4.2$  (1), 77 (2) и 290 K (3), зависимость  $R_H(x)$  для сплавов Al-Si [19] (4) и изменение коэффициента Холла  $R_H(4.2$  K) (5) и  $R_H(290$  K) (6) при последовательном отжиге метастабильного состава  $Al_{0.915}Si_{0.085}$ .

до 6 T приведены на рис. 3. Отметим нелинейный характер зависимости  $R_H$  от магнитного поля для Al и твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$ , содержащих до 1.5 at.% Si (см., например, кривые 1, 2, рис. 3). Значительное увеличение поля инверсии знака параметра  $R_H$  (до 5.7 T) исследованного образца Al в сравнении с чистым поликристаллическим Al (в алюминии  $B_{inv} = 0.05$  T [17]), по-видимому, следует отнести за счет термобарической обработки и увеличения числа структурных дефектов в образце, синтезированном под давлением.

Растворение кремния в алюминии вызывает дальнейшее увеличение значения  $B_{inv}$ . Для  $x_{Si} > 2.5$  at.% коэффициент Холла  $R_H$  при гелиевой температуре практически постоянен в полях до 6 T, тогда как абсолютная величина  $R_H$  (4.2 K) растет с увеличением содержания кремния (рис. 3, кривые 3, 4, см. также рис. 4). Измерения  $R_H(B, 4.2$  K) для составов с  $x = 0.035$  и 0.065, выполненные на установке "Соленоид" ИОФ РАН, показали постоянство коэффициента Холла в магнитных полях до 15 T в пределах точности эксперимента.

Поскольку величина  $B_{inv}$  определяет переход от диапазона слабых к диапазону сильных магнитных полей [17,19], отсутствие изменений  $R_H(B)$  в исследованном диапазоне полей, по всей видимости, следует связать с малой длиной свободного пробега носителей вследствие сильного примесного рассеяния в соединениях ряда  $Al_{1-x}Si_x$ . Таким образом, измеренные в данной работе значения  $R_H$  для составов  $Al_{1-x}Si_x$  с  $x > 0.03$  в

магнитном поле до 15 Т соответствуют пределу слабых магнитных полей. Отметим, что измерения коэффициента Холла сплавов  $Al_{1-x}Si_x$ , полученных в результате отжига соединений  $Al_{1-x}Si_x$  ( $\sim 10$  мин при  $T = 620$  К), инициирующего полный распад пересыщенных твердых растворов, позволили определить значение поля инверсии  $B_{inv} = 2.1$  Т (см., например, рис. 3, кривая 5). Очевидно, что отмеченное уменьшение величины  $B_{inv}$  по сравнению со значением поля инверсии в случае барически обработанного Al следует отнести за счет частичного отжига собственных дефектов в ГЦК матрице на основе Al.

Существенно немонотонная температурная зависимость коэффициента Холла в Al в режиме малых магнитных полей [20] (кривая 1, вставка на рис. 3) стимулировала интерес к исследованию характера изменения  $R_H(T)$  в ряду твердых растворов замещения  $Al_{1-x}Si_x$ . Типичная зависимость  $R_H(T)$ , полученная в настоящей работе (вставка на рис. 3, кривая 2), демонстрирует заметное уменьшение величины коэффициента Холла при повышении температуры в непосредственной окрестности гелиевой ( $dR_H/dT \approx -1.4 - 2 \cdot 10^{-7} \text{ м}^3/(\text{С} \cdot \text{К})$  при  $T \leq 15$  К). Такое поведение характерно для всех соединений ряда  $Al_{1-x}Si_x$  в исследуемом диапазоне концентраций Si. Следует особо отметить, что в отличие от результатов, полученных в [20] для чистого Al, для составов  $Al_{1-x}Si_x$  ( $x > 0.01$ ) не наблюдалось немонотонного поведения  $R_H(T)$  во всем исследуемом температурном интервале  $2 < T < 290$  К (см. вставку на рис. 3).

В то же время в окрестности комнатной температуры концентрационная зависимость коэффициента Холла, найденная из измерений образцов  $Al_{1-x}Si_x$  различных составов, оказывается существенно немонотонной (кривая 3, рис. 4). Для сравнения на рис. 4 приведены также зависимости  $R_H(x)$  в ряду  $Al_{1-x}Si_x$  при гелиевой (кривая 1) и азотной (кривая 2) температурах. Легко видеть, что, несмотря на достаточно большой разброс абсолютных значений коэффициента Холла при гелиевой температуре, зависимости  $R_H(x)$  при  $T = 4.2$  и 77 К в пределах экспериментальной точности описываются монотонными кривыми, в то время как коэффициент Холла при комнатной температуре существенно нелинейно зависит от концентрации Si в  $Al_{1-x}Si_x$ . Начальное уменьшение абсолютной величины  $R_H(x)$  в области составов  $x < 3$  at.% полностью коррелирует с результатами [21] (см. рис. 4, кривая 4), сменяясь ростом  $|R_H|$  в диапазоне  $3 \leq x \leq 7$  at.% с максимумом  $R_H = 3.5 \cdot 10^{-11} \text{ м}^2/\text{С}$  при  $x \approx 6.5$  at.%. Небольшие различия в абсолютной величине коэффициента Холла  $R_H(x, 290 \text{ К})$  между результатами [21] ( $x \leq 0.01$ ) и данными, полученными в настоящей работе, на наш взгляд, следует связать с особенностями применяемой нами методики синтеза в условиях высокого давления [14], позволяющей значительно уменьшить концентрацию вакансий в исследуемых образцах [2,13].

С целью получения дополнительной информации о поведении концентрационной зависимости  $R_H(x, 290 \text{ К})$

были проведены измерения коэффициента Холла в состояниях, соответствующих различным стадиям распада твердого раствора  $Al_{0.92}Si_{0.08}$  при пошаговом изотермическом отжиге. Распад метастабильного состояния соединений ряда  $Al_{1-x}Si_x$  сопровождается обеднением матрицы твердого раствора с образованием полупроводниковых включений кремния субмикронного размера [22]. В этом случае следует ожидать, что кинетические свойства сплава в процессе фазового превращения, в частности электросопротивление, будут определяться не включениями полупроводникового Si, а перколяцией по обедненной "низкоомной" матрице твердого раствора  $Al_{1-x}Si_x$ , отслеживая тем самым изменение содержания кремния в металлической фазе. Экспериментальным подтверждением этому обстоятельству может служить наблюдаемая корреляция зависимости остаточного сопротивления  $\rho_0(x_{Si})$  в ряду Al-Si с уменьшением  $\rho_0$  при отжиге твердого раствора  $Al_{1-x}Si_x$  [16]. В такой ситуации содержание кремния в металлической фазе на промежуточной стадии распада твердого раствора  $Al_{1-x}Si_x$  определяется по значению температуры перехода в сверхпроводящее состояние с учетом известной зависимости  $T_c(x)$  для соединений  $Al_{1-x}Si_x$  [1].

Результаты измерений коэффициента Холла при пошаговом отжиге твердого раствора показывают изменение характера зависимости  $R_H(x)$  при увеличении температуры от гелиевой (рис. 4, кривая 5) до комнатной (рис. 4, кривая 6). Следует отметить, что при гелиевой температуре поведение коэффициента Холла на различных стадиях отжига образца  $Al_{0.915}Si_{0.085}$  практически повторяет концентрационную зависимость  $|R_H|(x, 4.2 \text{ К})$  (см. кривые 1 и 5 на рис. 4). В то же время при температурах в окрестности комнатной в процессе распада твердого раствора  $Al_{0.915}Si_{0.085}$  не наблюдается максимума на зависимости  $R_H(x)$  для промежуточных состояний ряда  $Al_{1-x}Si_x$  (см. кривую 6 на рис. 4).

Наблюдаемые различия в поведении зависимостей  $R_H(x, 290 \text{ К})$  в области концентраций  $4 \leq x \leq 8.5$  at.% (рис. 4, кривые 3, 6), на наш взгляд, следует отнести за счет микроскопической неэквивалентности образцов синтезированного в условиях высокого давления ряда твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  и реализуемой в процессе пошагового отжига исходного состава  $Al_{0.915}Si_{0.085}$  последовательности состояний, отвечающих сплавам, в которых матрица твердого раствора  $Al_{1-x}Si_x$  содержит полупроводниковые включения кремния субмикронного размера. В данном диапазоне концентраций ожидается преобладание полиатомных кластеров кремния над одиночными атомами в ГЦК решетке твердого раствора Al [7]. В такой ситуации на ранних стадиях распада твердого раствора, по-видимому, происходит локальная перестройка структуры кластеров, необратимо изменяющая конфигурацию валентных электронов атомов кремния, а следовательно, и рассеивающий потенциал примеси.

На поздних стадиях распада пересыщенных твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  (концентрация кремния в металличе-

ской фазе сплава Al–Si менее 4 at.%), как и в твердых растворах  $Al_{1-x}Si_x$  соответствующего концентрационного диапазона, в металлической фазе доминируют одиночные атомы кремния. В данном диапазоне концентраций наблюдаемое при отжиге увеличение  $|R_H|_{T=290\text{K}}$  (рис. 4, кривая б) коррелирует с концентрационной зависимостью  $R_H(x, 290\text{K})$  в ряду  $Al_{1-x}Si_x$  (рис. 4, кривая 3) и, по-видимому, обусловлено сопровождающим распад твердого раствора уменьшением концентрации кремния в металлической фазе. При этом небольшие различия абсолютных значений коэффициента Холла связываются с исчезновением локальных напряжений и дефектов, производимых закалкой в условии высокого давления.

### 3. Обсуждение результатов

Гальваномагнитные характеристики металлов в слабых магнитных полях определяются анизотропией рассеяния электронных состояний на поверхности Ферми (ПФ) [23,24]. В изотропном случае (длина свободного пробега электронов  $l = \text{const}$ ) для сферической ПФ выполняются соотношения  $R_H = R_{FE} = (nec)^{-1}$ ,  $\Delta\rho/\rho = 0$  [24], соответствующие приближению свободных электронов. Таким образом, существенное отклонение значений  $R_H$  твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  от  $R_{FE} = -3.47 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3/\text{C}$ , наблюдаемое в данной работе при низких температурах, свидетельствует о необходимости учета анизотропии даже в условиях сильного примесного рассеяния.

Непосредственный расчет гальваномагнитных характеристик [23] затруднен ввиду отсутствия количественной информации о зависимости  $l(\mathbf{k})$ . В то же время при использовании упрощающих предположений результаты исследований  $R_H$  и  $\rho(B)$  позволяют получить качественную информацию об анизотропии параметра  $l$  на ПФ [24]. В частности, в рамках модели трех групп носителей заряда [8–12] коэффициент Холла и магнитосопротивление могут быть выражены через усредненные длины свободного пробега  $l_-$  и  $l_{++}$  электронов и дырок 2 зоны и  $l_{--}$  электронов 3 зоны Бриллюэна [24]:

$$\Delta\rho/\rho = (R_{FE}B/\rho_0)^2 g_m (l_{--}^3 + l_{++}^3)/l_-^3, \quad (1)$$

$$R_H = R_{FE} (1 + g_n (l_{--}^2 - l_{++}^2)/l_-^2), \quad (2)$$

где  $g_m, g_n$  — коэффициенты, определяемые геометрией ПФ (численные значения для сплавов Al–Si составляют 50 и 1.875 соответственно [11]).

Результаты расчета параметров  $l_-/l_{++}$ ,  $l_-/l_{--}$ , а также параметра анизотропии  $l_{--}/l_{++}$  (см. [12]) по формулам (1)–(2) для  $T = 4.2\text{K}$  представлены на рис. 5. Во всем исследуемом диапазоне концентраций твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  при гелиевой температуре выполняется соотношение  $l_{--} < l_{++}$ . Рост концентрации кремния в твердом растворе до 2.5 at.% сопровождается увеличением значений параметров  $l_{--}/l_-$  и  $l_{++}/l_-$ ,

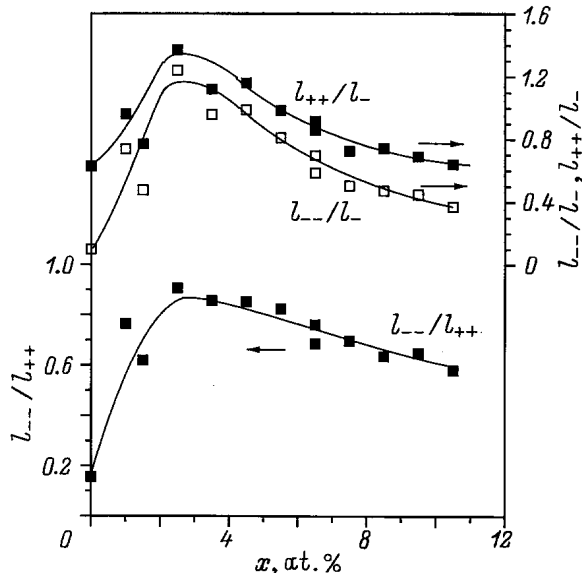


Рис. 5. Изменение характеристик рассеяния носителей заряда с увеличением концентрации кремния в ряду  $Al_{1-x}Si_x$  при 4.2 K.

которое следует связать с усилением эффективности рассеяния электронов сферической части ПФ алюминия. По-видимому, такое поведение характеризует анизотропию рассеяния носителей заряда на одиночных рассеивающих примесных атомах и соответствует изученным ранее случаям разбавленных твердых растворов на основе Al [8–11]. Дальнейший рост содержания кремния в твердом растворе ( $x > 2.5\text{at.}\%$ ) приводит к монотонному уменьшению значений как  $l_{--}/l_-$  и  $l_{++}/l_-$ , так и параметра анизотропии  $l_{--}/l_{++}$ . Поскольку данный диапазон концентраций характеризуется образованием полиатомных кластеров кремния в ГЦК решетке [7] и приводит к значительным искажениям структуры ближнего порядка на расстояниях, сравнимых с длиной свободного пробега, наблюдаемое поведение следует связать с особенностями метастабильного состояния атомов кремния, обусловленными большой долей связей типа Si–Si. Подчеркнем, что метастабильное состояние кремния в металлической матрице определяет также существенное отклонение от линейной зависимости в сторону меньших значений величины остаточного сопротивления твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  при  $x > 2.5\text{at.}\%$  [7].

Увеличение температуры обуславливает ”включение” фононного механизма рассеяния на фонах и приводит к эффективному перемешиванию электронных состояний и изотропизации ПФ [20]. При этом сравнение зависимостей коэффициента Холла для чистого поликристаллического Al [20] и твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  (см. вставку на рис. 3) свидетельствует о необходимости учета анизотропии электронного спектра при расчете характеристик электронов зоны проводимости твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  в диапазоне температур вплоть до азотной.

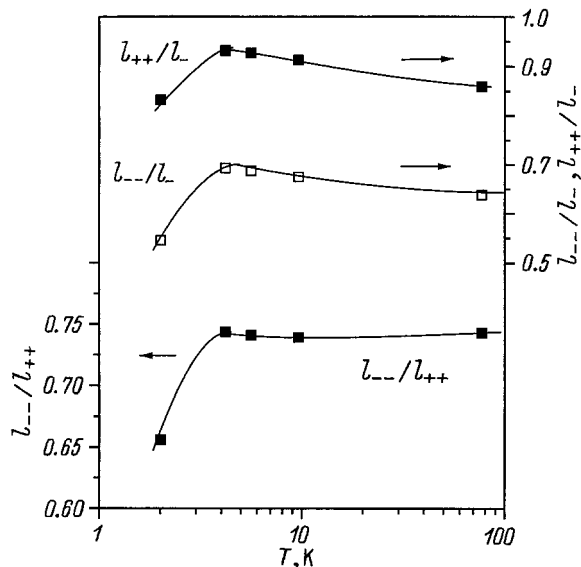


Рис. 6. Температурная зависимость параметров анизотропии для твердого раствора  $\text{Al}_{0.935}\text{Si}_{0.065}$ .

Анализ результатов исследования температурных зависимостей коэффициента Холла и магнитосопротивления образца  $\text{Al}_{0.935}\text{Si}_{0.065}$  (вставки на рис. 1, 3) в рамках модели (1), (2) показывает, что при увеличении от гелиевой температуры до азотной параметр анизотропии  $l_{--}/l_{++}$  остается практически неизменным (рис. 6). Отмеченная тенденция характерна для составов  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  с  $x > 3 \text{ at.}\%$  и, по-видимому, указывает на сходное поведение температурной зависимости длины свободного пробега электронных и дырочных состояний 3 и 2 зон Бриллюэна. В то же время наблюдаемое с ростом температуры уменьшение значений  $l_{--}/l_{-}$  и  $l_{++}/l_{-}$  (рис. 6), на наш взгляд, свидетельствует о более сильном взаимодействии с фононной подсистемой электронных состояний окрестности границ зоны Бриллюэна по сравнению с состояниями сферической части ПФ.

Следует подчеркнуть, что используемая для анализа экспериментальных результатов модель трех групп носителей заряда (1), (2) позволяет получить лишь качественную информацию об анизотропии рассеяния носителей заряда в твердых растворах  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  [10,24]. При этом применимость соотношений (1), (2) в широком диапазоне концентрации примеси замещения определяется сохранением топологии поверхности Ферми алюминия в исследуемых объектах [24]. В случае твердых растворов  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  изменение топологии ПФ может быть обусловлено как неизовалентным характером замещения Al кремнием, так и изменением при замещении параметров ГЦК решетки алюминия. В то же время по данным рентгеновской эмиссионной и ЯМР спектроскопии твердых растворов  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  зона проводимости и плотность состояний на уровне Ферми остаются практически неизменными в ряду  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  [7], подтверждая, таким образом, правомерность использования модели

трех групп носителей (1), (2) для проведения оценок при анализе экспериментальных результатов (рис. 2, 4).

При температурах в окрестности комнатной ( $T \sim 290 \text{ K}$ ) неупругие механизмы рассеяния являются доминирующими, приводя к уменьшению эффектов анизотропии ПФ в соединениях  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ . В таких случаях экспериментальные зависимости  $R_H(x, 290 \text{ K})$ , и  $\rho(x, 290 \text{ K})$  в ряду  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  могут быть использованы для оценки поведения Холловской подвижности  $\mu_H = R_H/\rho$  в приближении одного типа носителей заряда. При этом в рамках используемого приближения немонотонная зависимость коэффициента Холла  $R_H(x)$  в окрестности  $x \approx 6.5 \text{ at.}\%$  ( $T = 290 \text{ K}$ ) (кривая 3 на рис. 4) обуславливает появление максимума на кривой  $\mu_H(x)$  (рис. 7, a). С учетом сохранения параметров зоны проводимости при увеличении содержания Si в твердых растворах  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  существенный вклад в наблюдаемые особенности может быть связан с изменением характера рассеяния носителей заряда в окрестности спинодали.

Сопоставление с результатами исследования области стабильности и кинетики распада показывает, что пересыщенные твердые растворы  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  при температурах выше комнатной абсолютно неустойчивы в области концентраций Si выше  $\sim 8 \text{ at.}\%$  [22]. При приближении к спинодали с ростом  $x$  в ряду  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  характерные времена атомных смещений уменьшаются, достигая при

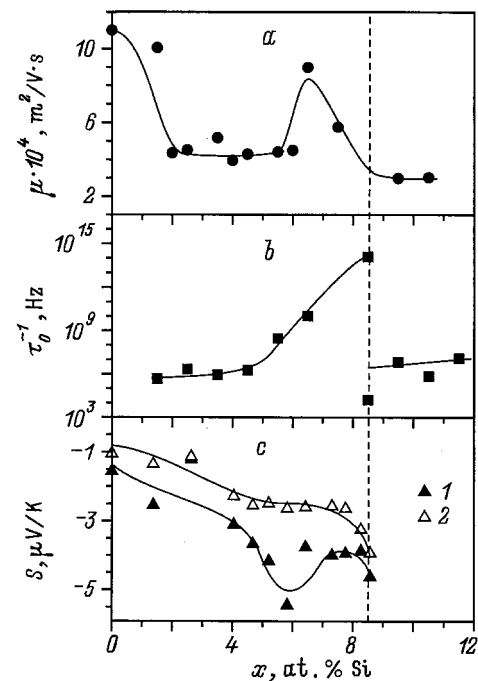


Рис. 7. a) Концентрационная зависимость подвижности носителей заряда  $\mu(x, 290 \text{ K})$  в ряду твердых растворов  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ . b) Изменение характерной частоты атомных перемещений  $\tau_0^{-1}$  с ростом концентрации кремния в ряду  $\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$  [22]. c) Изменение коэффициента термоэдс  $S(x)$  при последовательном отжиге твердого раствора  $\text{Al}_{0.915}\text{Si}_{0.085}$  при температуре в окрестности максимума  $S(T)$  (1) и при  $T = 250 \text{ K}$  [25] (2).

$x \approx 8 \text{ at.}\%$  значения  $\tau_0^{-1} \approx 10^{-13} \text{ s}$  (рис. 7, *b*). Отмеченное увеличение атомной подвижности в окрестности значения  $x \approx 6.5 \text{ at.}\%$  оказывается скоррелированным с ростом Холловской подвижности (рис. 7, *a, b*).

Таким образом, при интерпретации в рамках используемых моделей приближение к области неустойчивости ГЦК структуры с ростом температуры сопровождается одновременным ростом подвижностей в атомной и электронной подсистемах. Дополнительным аргументом в пользу существования отмеченной корреляции в поведении подвижностей является значительное усиление электрон-фононного взаимодействия (ЭФВ) и температуры сверхпроводящего перехода  $T_c$  с ростом концентрации кремния в твердых растворах  $Al_{1-x}Si_x$ . С учетом выявленных при исследовании температурных зависимостей термоэдс в ряду  $Al_{1-x}Si_x$  значительного увеличения диффузионного вклада  $S(x, T)$  с ростом  $x$  [25] и аномальной концентрационной зависимости коэффициента термоэдс (рис. 7, *c*) для полного анализа изменения характеристик носителей заряда в ряду  $Al_{1-x}Si_x$  необходимо адекватно учесть влияние эффектов ЭФВ в окрестности структурной неустойчивости кристаллической решетки.

В этой связи следует отметить, что последовательный учет всей совокупности факторов, определяющих особенности магнитотранспортных и термоэлектрических характеристик неравновесных металлов, в настоящее время затруднен по ряду причин. Так, формирование полиатомных кластеров Si приводит к значительным локальным деформациям ГЦК структуры твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$ . Существование в примесном металле таких областей с динамической разупорядоченностью решетки обуславливает дополнительное неупругое рассеяние электронов проводимости на примесных атомах [26], что требует учета интерференционных эффектов в электрон-фонон-примесном рассеянии [26,27]. С другой стороны, учет сильного ЭФВ при анализе модели цепочек атомов приводит к выводу [28] о возможном нарушении адиабатического приближения при описании свойств электронной и фононной подсистем. Таким образом, существующие сложности не позволяют количественно оценить характеристики твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$ , исследуемые в данной работе.

В заключение отметим, что в настоящей работе представлены результаты исследования магнитосопротивления  $\Delta\rho(B)/\rho$  и коэффициента Холла  $R_H$  в неравновесных твердых растворах  $Al_{1-x}Si_x$  ( $x < 0.12$ ) в широком диапазоне температур ( $1.6 < T < 300 \text{ K}$ ) и магнитных полей ( $B < 15 \text{ T}$ ). Вследствие сильного примесного рассеяния в соединениях ряда  $Al_{1-x}Si_x$  ( $x > 0.02$ ) в исследуемом диапазоне изменения  $B$  реализуется случай слабых магнитных полей ( $\omega\tau \ll 1$ ). Особенности концентрационных зависимостей  $\Delta\rho(B)/\rho(x, T)$  и  $R_H(x, T)$  составов ряда  $Al_{1-x}Si_x$ , а также изменение гальваномагнитных коэффициентов при пошаговом изотермическом отжиге, приводящем к распаду пересыщенных твердых

растворов  $Al_{1-x}Si_x$ , связываются с изменением эффективности рассеяния электронов зоны проводимости на дефектах кристаллической структуры, обусловленных замещением алюминия кремнием.

В окрестности комнатной температуры обнаружено аномальное поведение коэффициента Холла  $|R_H(x)|$ , отвечающее значительному увеличению Холловской подвижности электронов проводимости  $\mu_H$  для составов  $Al_{1-x}Si_x$  с содержанием кремния  $x \approx 6.5 \text{ at.}\%$ . Обсуждается возможность корреляции между изменением  $R_H(x, 290 \text{ K})$  и  $\mu(x, 290 \text{ K})$  и увеличением атомной подвижности в условиях сильного электрон-фононного взаимодействия вблизи границы абсолютной неустойчивости твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$ .

В рамках модели трех групп носителей заряда проанализирован характер изменения длины свободного пробега электронов проводимости с ростом концентрации растворенного кремния в ряду  $Al_{1-x}Si_x$ . Полученные результаты указывают на необходимость учета анизотропии рассеяния носителей заряда при анализе кинетических характеристик твердых растворов  $Al_{1-x}Si_x$  при гелиевых и промежуточных температурах.

Работа выполнена при финансовой поддержке в рамках программ Министерства науки и технологии РФ "Фуллерены и атомные кластеры" и "Фундаментальная спектроскопия", а также научных грантов (INTAS-96-0451, РФФИ-96-02-16176, РФФИ-98-02-17163).

## Список литературы

- [1] V.F. Degtyareva, G.V. Chipenko, I.T. Belash, O.I. Barkalov, E.G. Ponyatovskii. Phys. Stat. Sol. (a) **89**, 1, K127 (1985).
- [2] V.V. Brazhkin, S.V. Popova, R.N. Voloshin, L.M. Stanev, I.G. Spirov. High Press. Res. **6**, 2, 333 (1992).
- [3] Физические величины. Энергетомиздат, М. (1991). 1232 с.
- [4] N.E. Sluchanko, V.V. Glushkov, S.V. Demishev, N.A. Samarin, V.V. Brazhkin. Ferroelectrics **177**, 17 (1996).
- [5] J. Chevrier, J.V. Suck, J.J. Caponi, M. Perroux. Phys. Rev. Lett. **61**, 5, 554 (1988).
- [6] V.V. Brazhkin, V.V. Glushkov, S.V. Demishev, Yu.V. Kosichkin, N.E. Sluchanko, A.I. Shulgin. J. Phys.: Condens Mater. **5**, 5933 (1993).
- [7] N.E. Sluchanko, V.V. Glushkov, S.V. Demishev, N.A. Samarin, A.K. Savchenko, J. Singleton, W. Hayes, V.V. Brazhkin, A.A. Gippius, A.I. Shulgin. Phys. Rev. **B51**, 2, 1112 (1995).
- [8] K. Böning, K. Pfänder, P. Rosner, M. Schlütter. J. Phys. **F5**, 6, 1176 (1975).
- [9] C. Papastaikoudis, E. Rocofillou, W. Tselves, K. Chountas. Z. Phys. **B25**, 2, 131 (1976).
- [10] W. Kesternich, H. Ulmaier, W. Schilling. J. Phys. **F6**, 10, 1867 (1976).
- [11] P. Papazisi, A. Travlos, C. Papastaikoudis. J. Phys.: Condens. Matter. **2**, 8, 6189 (1990).
- [12] N. Boukos, C. Papastaikoudis. Phys. Rev. **B46**, 8, 4508 (1992).
- [13] В.В. Бражкин, В.В. Глушков, С.В. Демишев, Ю.В. Косичкин, Н.Е. Случанко, А.И. Шульгин. ФТТ **35**, 2, 481 (1993).
- [14] L.G. Khvostantsev, L.F. Vereshchagin, A.P. Novikov. High Temp.–High Press. **9**, 6, 637 (1977).

- [15] Ф. Зеегер. Физика полупроводников. Мир, М. (1977). 631 с.
- [16] В.В. Глушков. Канд. дис. МФТИ, М. (1996). 138 с.
- [17] Е.С. Боровик. ЖЭТФ **23**, 1, 83 (1952).
- [18] E. Rocofillou, C. Papathanassopoulos. Physica **B100**, 1, 99 (1980).
- [19] K. Førsvoll, I. Holwech. Phil. Mag. **10**, 3, 921 (1964).
- [20] R.D. Barnard, A.E.E. Abdel Rahiem. J. Phys. **F10**, 9, 2739 (1980).
- [21] J.M. Bradley, J. Stringer. J. Phys. **F4**, 5, 839 (1974).
- [22] N.E. Sluchanko, V.V. Glushkov, S.V. Demishev, A.K. Savchenko, V.V. Brazhkin. J. Phys.: Condens Mater. **6**, 9079 (1994).
- [23] M.J. Tsuji. J. Phys. Soc. Jap. **13**, 9, 979 (1958).
- [24] W. Kesternich. Phys. Rev. **B13**, 10, 4227 (1976).
- [25] Н.Е. Случанко, В.В. Глушков, С.В. Демишев, М.В. Кондрин, Н.А. Самарин, В.В. Бражкин, В.В. Мошалков. ЖЭТФ **113**, 1, 339 (1998).
- [26] А.П. Жернов, Н.А. Черноплеков, Э. Мрозан. Металлы с немагнитными примесными атомами. Энергоатомиздат, М. (1992). 368 с.
- [27] М.Ю. Рейзер, А.В. Сергеев. ЖЭТФ **92**, 6, 2291 (1987).
- [28] C.C. Yu, P.W. Anderson. Phys. Rev. **B29**, 11, 6165 (1984).