

# Особенности кинетических и магнитных свойств монокристаллов $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Te$ высокого структурного совершенства

© М.В. Радченко, Г.В. Лашкарев, Е.И. Слынько, А.П. Малышева

Институт проблем материаловедения Академии наук Украины,  
252680 Киев, Украина

(Поступила в Редакцию 29 июля 1998 г.  
В окончательной редакции 10 января 1999 г.)

В интервале температур 4.2–300 К, в магнитных полях до 4 Т исследованы электрические, термоэлектрические, термомагнитные и магнитные свойства монокристаллов твердого раствора  $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Te$ . Показано, что улучшение его структурного совершенства приводит к появлению второго структурного фазового перехода (СФП), а также к увеличению температуры первого СФП.

Твердые растворы теллуридов свинца и олова представляют значительный интерес для инфракрасной оптоэлектроники. Эффективность работы приборов на основе этих соединений в значительной мере зависит от их химической однородности и структурного совершенства. Последнее определяется плотностью дислокаций, количеством малоугловых границ и т.д.

Известно, что в узкозонных полупроводниках  $Pb_{1-x}Sn_xTe$  в интервале составов  $0.2 \leq x \leq 1.0$  и температур  $4.2 < T < 300$  К наблюдается нестабильность кристаллической решетки, которая приводит при понижении температуры к сегнетоэлектрическому структурному фазовому переходу (СФП) II рода типа смещения из кубической ( $O_h$ ) в ромбоэдрическую ( $C_{3v}$ ) фазу [1,2]. В работе [3] с помощью рентгеноструктурного анализа авторами обнаружено существование трех СФП, причем в двух из них происходит изменение симметрии кристаллической решетки. Свободные носители тока и структурные дефекты кристаллической решетки оказывают существенное влияние на фазовый переход. Сильное рассеяние носителей тока при СФП [4] вызвано локальными флуктуациями поляризации, связанными с наличием неоднородностей и с флуктуациями параметра порядка в критической точке.

В настоящей работе приводятся результаты исследования коэффициента Холла  $R$ , удельного сопротивления, термоэдс  $\alpha$ , магнитной восприимчивости (МВ)  $\chi$  в интервале температур 4.2–300 К и шубниковских осцилляций  $\alpha$  в магнитных полях  $H$  до 4 Т.

Коэффициент Холла, удельное сопротивление и термоэдс изменялись компенсационным методом на постоянном токе. Измерения температуры образца и его градиента ( $\sim 2$  К/см) проводились термопарой медь–золото (легированное железом). В области температур жидкого гелия и водорода учитывали абсолютную термоэдс меди. МВ измерялась относительным методом Фарадея с помощью электронных микровесов с автоматической компенсацией [5].

Монокристаллы  $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Te$  диаметром 40 мм получены из паровой фазы. При синтезе использовались свинец чистоты 99.9999%, олово и теллур — 99.999999% для понижения концентрации носителей тока образцы подвергались изотермическому отжигу в парах, содержащих избыток металла. Образцы вырезались в плоскости

(100). Удаление нарушенного механической полировкой слоя поверхности образца проводилось электрохимическим полированием и химической обработкой в смеси  $Br + HBr$ .

Исследования структуры кристаллов  $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Te$  показали, что плотность дислокаций не превышает  $2 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-2}$ , а малоугловые границы отсутствуют. Контроль однородности образцов проводился с помощью измерения термоэдс в магнитном поле по методике, описанной в [6]. Все исследованные образцы имели дырочный тип проводимости.

На рис. 1 представлена температурная зависимость термоэдс на одном из образцов с холловской концентрацией дырок  $p = 2.12 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  и подвижностью  $\mu = 5.2 \cdot 10^5 \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ . На том же рисунке показана зависимость  $\alpha(T)$  образца  $PbTe$  ( $p = 3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ), в котором, как известно [1], СФП отсутствует. В области температур  $6 < T < 35$  К термоэдс кристаллов  $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Te$  линейна и обнаруживает излом при  $T_{c1} = 35$  К. Зависимость  $\alpha(T)$  при  $\mu H/c \gg 1$  ( $\alpha_\infty$ ) также имеет излом при той же температуре, что и  $\alpha_0$ . Этот факт указывает на то, что процессы рассеяния носителей тока не принимают участия в формировании этого излома. Такую особенность  $\alpha$  мы наблюдали ранее при  $T = 20$  К для кристаллов с близкой концентрацией носителей тока,

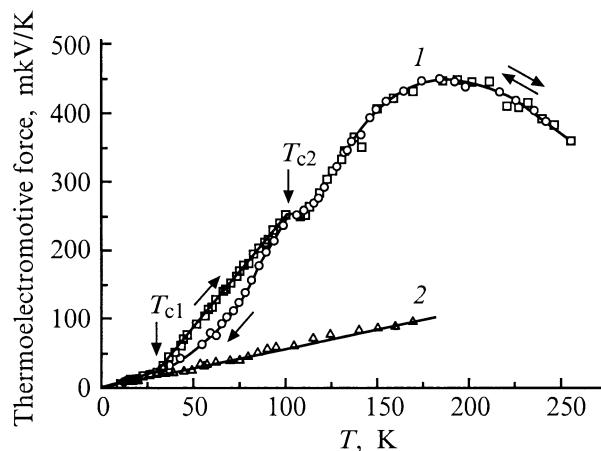


Рис. 1. Температурная зависимость термоэдс образца 3 (1) и  $PbTe$  (2).

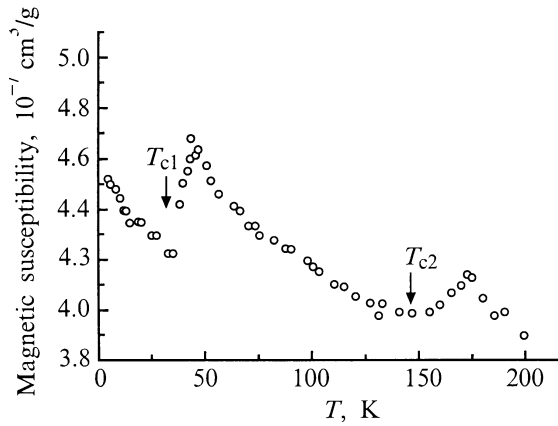


Рис. 2. Температурная зависимость МВ (образец 3).

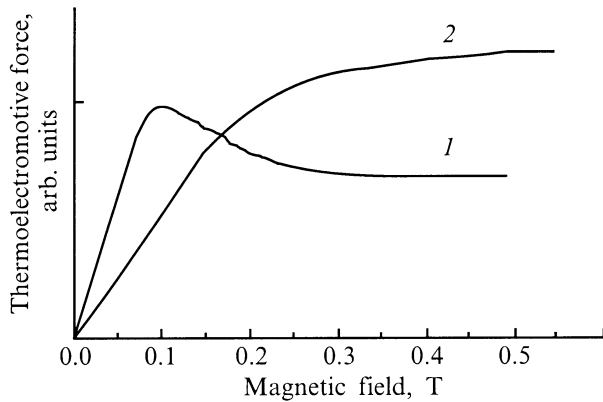


Рис. 3. Зависимость термоэдс в продольном (1) и поперечном (2) магнитных полях при  $T = 5.1$  К (образец 3).

испытывающих структурный фазовый переход [2,7,8]. При  $T_{c2} = 115$  К обнаружена особенность, которую мы связываем со вторым СФП, причем в температурном диапазоне  $T_{c1} < T < T_{c2}$  термоэдс описывает петлю гистерезиса малой площади, что, по нашему мнению, подтверждает структурную неустойчивость кристалла в этом температурном диапазоне. Наблюдение петли гистерезиса термоэдс при СФП типа смещения осуществлено, насколько нам известно, впервые. Наличие максимума  $\alpha(T)$  при  $T \approx 180$  К и дальнейшее уменьшение  $\alpha$  с температурой связано с наступлением собственной проводимости.

Отметим, что при  $T_{c1}$ , когда электронный газ находится в вырожденном состоянии, наблюдается излом линейной зависимости  $\alpha(T)$ , в то время как при  $T_{c2}$ , где вырождение снято, особенность  $\alpha(T)$  имеет характер перегиба. Подобные закономерности уже отмечались нами ранее, для образцов  $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Te$  [2] и  $Pb_{0.94}Ge_{0.06}Te$  [8], что является дополнительным аргументом в пользу того, что мы действительно наблюдаем СФП.

Температура первого СФП в образцах  $Pb_{0.8}Sn_{0.2}Te$ , полученных нами из паровой фазы, существенно выше, чем в случае кристаллов, выращенных методом Бриджмена ( $\sim 25$  К). Это согласуется с данными работы [9], где по-

казано, что дефекты кристаллов понижают температуру фазового перехода.

Изменения коэффициента Холла в исследованных образцах показали, что  $R$  практически не зависит от температуры и не имеет особенности при СФП, так как концентрация дырок мала и уровень Ферми в интервале температур 4.2–120 К находится в зоне легких дырок и не проникает в тяжелую зону [10], что приводит к неизменности их концентраций легких дырок при фазовом переходе.

Ранее для  $SnTe$ ,  $Pb_{0.18}Sn_{0.82}Te$  и  $Pb_{1-x}Sn_xTe$  [2,7,8] нами было показано, что при СФП МВ имеет особенность с минимумом. Температурная зависимость МВ образцов, изученных в данной работе, имеет две особенности в виде уменьшения парамагнетизма на диамагнитном фоне (рис. 2). Температура проявления первой особенности близка к величине  $T_{c1}$ , определенной из температурной зависимости термоэдс. Поэтому мы связываем ее с СФП, как это делалось ранее [2,7,8]. Действительно, при

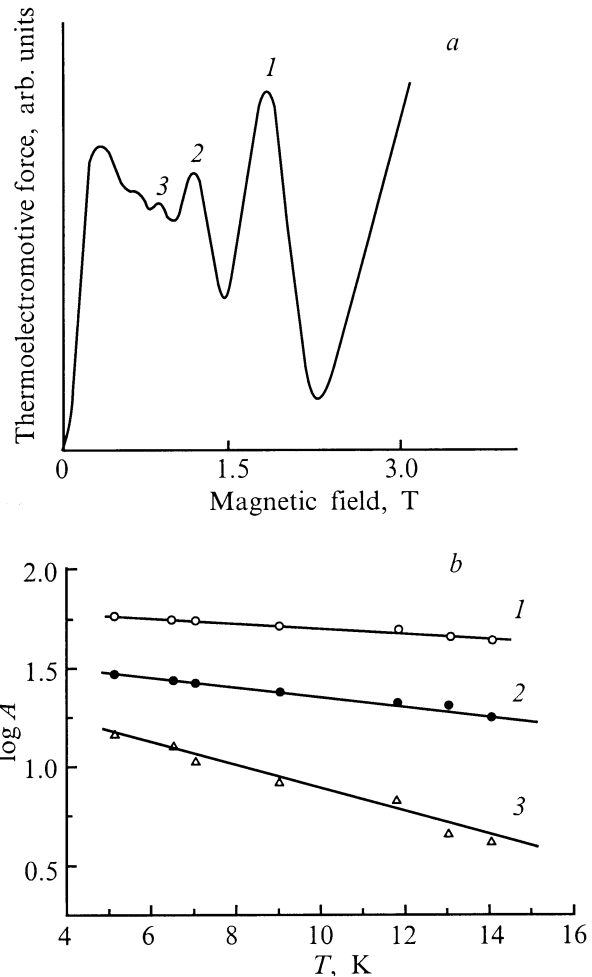


Рис. 4. *a* — квантовые осцилляции термоэдс в продольном магнитном поле при  $T = 5.1$  К (образец 3); *b* — температурная зависимость амплитуды осцилляций термоэдс в продольном магнитном поле. Номера прямых соответствуют номерам пиков осцилляций.

Характеристики образцов при  $T = 4.2$  К

Образцы	$p \cdot 10^{-7} \text{ см}^{-3}$ , из коэф. Холла	$p \cdot 10^{-7} \text{ см}^{-3}$ , из шубниковск. осцилл. $\alpha$	$\mu \cdot 10^5$ , $\text{см}^2/\text{V}\cdot\text{с}$	$m^*/m_0 \cdot 10^2$	К	$T_c$ , К	$\gamma$
1	2.03	1.8	1.5	1.83	10	20	2.3
2	3.11	2.5	2.0	1.82	10	22	2.0
3	2.12	1.9	5.8	1.76	10.5	35	2.5
4	3.81	3,5	5.2	1.75	10.4	36	2.4

Примечание. Образцы 1, 2 получены по методу Бриджмена; образцы 3, 4 получены из паровой фазы;  $\gamma$  определено из выражения  $\mu \sim T^{-\gamma}$ .

СФП возникает зависящая от температуры поправка к ширине запрещенной зоны  $E_g$ . В связи с малостью  $E_g$  в узкощелевом  $\text{Pb}_{0.8}\text{Sn}_{0.2}\text{Te}$  перенормировка зонного спектра должна приводить к изменениям его магнитных и кинетических свойств: появляется поправка к МВ, обязанная флуктуациям параметра порядка в области СФП [11]. Температура проявления на МВ второго ФП ( $T_{c2} \sim 140$  К) выше температуры особенности  $\alpha(T)$ , что, по-видимому, связано с другой природой этого ФП.

На рис. 3 приведены экспериментальные зависимости  $\alpha$  в продольном ( $\alpha_{\parallel}$ ) и поперечном ( $\alpha_{\perp}$ ) относительно градиента температуры магнитном поле при температуре  $T = 5.1$  К. Используя методику расчета [12], был определен коэффициент анизотропии эффективных масс  $K = m_{\parallel}^*/m_{\perp}^*$  ( $m_{\parallel}^*$  — продольная,  $m_{\perp}^*$  — поперечная эффективные массы носителей тока соответственно).

Высокое структурное совершенство исследованных нами кристаллов, большие подвижности и малые эффективные массы носителей тока при наличии вырождения дырочного газа дали нам возможность исследовать шубниковские осцилляции  $\alpha$  в образцах  $\text{Pb}_{0.8}\text{Sn}_{0.2}\text{Te}$ .

Исследования термоэдс в квантующем продольном магнитном поле проведены на образцах, ориентированных так, чтобы вектор магнитного поля и градиент температуры были параллельны оси высокой симметрии  $H \parallel \nabla T \parallel \langle 100 \rangle$  при выполнении условий:  $\Omega H/kT > 1$  и  $\zeta/kT > 1$  ( $\Omega$  — циклотронная частота,  $\zeta$  — уровень химического потенциала).

На рис. 4 представлена зависимость термоэдс от магнитного поля при  $T = 5.1$  К. Наблюдаются ярко выраженные моносоставные осцилляции  $\alpha(H)$ , в которых положение осцилляций определяется концентрацией носителей тока (энергией Ферми).

Частоту осцилляций  $F$  определяли из наклона зависимости  $1/H_{\text{extr}}$  от номера уровня Ландау ( $H_{\text{extr}}$  — значение магнитного поля в экстремуме термоэдс). Экстремальная площадь сечения поверхности Ферми  $S_{\text{extr}}$  плоскостью, перпендикулярной вектору магнитного поля, связана с  $F$  соотношением

$$S_{\text{extr}} = (2\pi\hbar e/c)F. \quad (1)$$

Концентрацию дырок в одном  $L$ -экстремуме можно вычислить из зависимости периода осцилляций  $\Delta = (1/H_{n+1}) - (1/H_n)$  от величины обратного магнитного поля, используя выражение

$$\Delta(1/H) = 3.18 \cdot 10^6 K^{1/2}/p^{2/3}. \quad (2)$$

Из анализа температурной зависимости амплитуд осцилляций  $A$  определена величина циклотронной эффективной массы на уровне Ферми  $m_c^*$  в  $L$ -минимуме. Значения  $m_c^*$  и концентрации носителей тока, вычисленные из осцилляций термоэдс при  $t = 5.1$  К, приведены в таблице. Видно, что полная концентрация дырок в четырех  $L$ -экстремумах с точностью до 10% совпадает с холловской концентрацией носителей тока.

Таким образом, улучшение структурного совершенства монокристаллов твердых растворов  $\text{Pb}_{0.8}\text{Sn}_{0.2}\text{Te}$  привело к увеличению температуры первого СФП, появлению второго СФП и гистерезиса термоэдс в температурном интервале между первым и вторым СФП. Обнаружено также увеличение показателя степени  $\gamma$  температурной зависимости подвижности  $\mu \sim T^{-\gamma}$  от 2.1–2.3 до 2.5, что свидетельствует об уменьшении рассеяния носителей тока на дефектах решетки.

Авторы благодарят А.В. Бродского и А.Л. Мирца за измерение магнитной восприимчивости.

## Список литературы

- [1] K.L.I. Kobayashi, Y. Kato, Y. Katayama, K.F. Komatsubara. Phys. Rev. Lett. **37**, 12, 772 (1976).
- [2] G.V. Lashkarev, V.M. Baginsky, R.O. Kikodze, M.V. Radchenko. Inst. Phys. Conf. Ser. **43**, ch. 18. Edinburg (1978). P. 597.
- [3] О.В. Александров, К.В. Киселева, Ю.А. Горина. ЖТФ **50**, 11, 2473 (1980).
- [4] А.П. Леванюк, В.В. Осипов, Ю.И. Эпифанов, А.С. Сигов. ЖЭТФ **76**, 1, 345 (1979).
- [5] G.V. Lashkarev, D.F. Mingley, A.D. Shevchenko, K.D. Tovstyuk. Phys. Stat. Sol. (b) **63**, 2, 663 (1974).
- [6] G.V. Lashkarev, M.V. Radchenko, Int. Workshop on Semimagnetic Semiconductors. Abstracts. Linz, Johannes Kepler University, Austria (1994). P. 207. Г.В. Лашкарев, М.В. Радченко, В.В. Асоцкий. Функциональные материалы **1**, 2, 67 (1994).
- [7] Г.В. Лашкарев, Р.О. Кикодзе, М.В. Радченко, В.Б. Орлецкий, Е.И. Слынько, И.З. Марчук. ФТП **13**, 8, 1548 (1979).
- [8] Г.В. Лашкарев, М.В. Радченко, В.Б. Орлецкий, Е.И. Слынько, Р.М. Старик. ФТП **14**, 3, 490 (1980); **21**, 10, 1921 (1987).
- [9] W. Jantsch, A. Lopez-Otero. Proc. of the 13th Int. Conf. Phys. Semicond. Roma (1976). P. 148.
- [10] Г.В. Лашкарев, М.В. Радченко. УФЖ **27**, 5, 747 (1982).
- [11] V.I. Litvinov, V.K. Dugaev. J. Exper. Theor. Phys. **77**, 2, 335 (1979).
- [12] С.А. Немов. ФТП **13**, 7, 1439 (1979).