

УДК 621.315.592

## ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЙ СПЕКТР РАДИАЦИОННЫХ ДЕФЕКТОВ В СПЛАВАХ $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ( $x \leq 0,06$ ), ОБЛУЧЕННЫХ ЭЛЕКТРОНАМИ

Н. Б. Брандт, Е. П. Скипетров, Б. Б. Ковалев, Л. А. Скипетрова

(кафедра физики низких температур и сверхпроводимости)

Исследованы гальваномагнитные эффекты в сплавах  $n$ - и  $p$ - $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x \leq 0,06$ ), облученных электронами, в интервале давлений  $P \leq 18$  кбар. Обнаружены переходы металл–диэлектрик и диэлектрик–металл, индуцированные электронным облучением и гидростатическим сжатием облученных кристаллов и связанные с возникновением глубокого уровня радиационных дефектов  $E_{t1}$  вблизи потолка валентной зоны  $L_6^+$ . Построена энергетическая диаграмма движения уровня относительно краев разрешенных зон в точке  $L$  зоны Бриллюэна под давлением.

### Введение

В настоящее время известно, что облучение  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $0,07 \leq x \leq 0,34$ ) электронами приводит к возникновению в энергетическом спектре сплавов зоны радиационных дефектов  $E_t$ , положение которой относительно края зоны  $L_6^-$  зависит от состава сплава:  $E_t \approx L_6^- + (87-250x)$  мэВ [1–3]. В сплавах с нормальным ( $E_g > 0$ ) спектром зона  $E_t$  расположена в зоне проводимости и удаляется от дна зоны  $L_6^-$  при уменьшении концентрации олова  $x$ .

Для построения модели энергетического спектра облученных электронами сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  во всей области существования кубической фазы и получения дополнительных данных об энергетическом положении резонансной зоны радиационных дефектов в сплавах с низким содержанием олова в настоящей работе исследовано влияние облучения электронами и последующего гидростатического сжатия на электрофизические свойства монокристаллических образцов  $n$ - и  $p$ - $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x = 0; 0,03; 0,06$ ). Предполагалось, что, так как в сплавах с  $x \leq 0,06$  незаполненная электронами резонансная зона радиационных дефектов должна находиться высоко в зоне проводимости, ее появление в энергетическом спектре сплавов не окажет существенного влияния на электрофизические параметры образцов при атмосферном давлении. При гидростатическом сжатии облученных кристаллов зона  $E_t$  должна двигаться параллельно краю зоны  $L_6^-$  и после инверсии зон в точке  $L$  попадать в запрещенную зону [2]. В сплавах с  $x \leq 0,06$  необходимое для этого давление составляет  $15 \div 20$  кбар. Поэтому лишь при максимальных достижимых в эксперименте давлениях, когда после инверсии зон в точке  $L$  расстояние между резонансной зоной и дном зоны проводимости  $L_6^+$  будет быстро уменьшаться, окажется возможным наблюдение эффектов, связанных с ее присутствием (перераспределение электронов между резонансной зоной и зоной проводимости, переход металл–диэлектрик и т. д.).

### 1. Образцы. Методика измерений

Образцы с исходными концентрациями электронов или дырок  $(0,4 \div 1,1) \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$  облучались при

комнатной температуре на линейном импульсном ускорителе ЭЛУ-6 быстрыми электронами с энергией  $E = 6$  МэВ. Суммарные дозы облучения исследованных в работе образцов измерялись с помощью цилиндра Фарадея и составляли  $\Phi \leq 5,7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$  ( $d\Phi/dt = (1-2) \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ ). Во избежание перегрева образцов и частичного отжига радиационных дефектов во время облучения образцы обдувались сжатым воздухом, а их температура контролировалась с помощью термопары медь–константан. Параметры образцов приведены в табл. 1, 2.

У всех образцов до облучения и после многократного облучения измерялись температурные зависимости удельного сопротивления  $\rho$  и коэффициента Холла  $R_H$  ( $B \leq 0,04$  Тл) в интервале температур

Т а б л и ц а 1

Параметры образцов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  при  $T = 4,2$  К

Образец	$x$	Тип	$\rho \cdot 10^4$ (Ом·см)	$ R_H $ (см <sup>3</sup> /Кл)	$N \cdot 10^{-17}$ (см <sup>-3</sup> )	$\mu_H \cdot 10^{-5}$ (см <sup>2</sup> /В·с)
N2	0	$n$	10,4	97,4	0,64	0,94
N7	0	$n$	2,7	38,9	1,62	1,44
N8	0	$n$	7,3	58,9	1,06	0,81
K-22	0,03	$p$	47,7	158,0	0,40	0,33
K-23	0,03	$p$	645,0	412,5	0,15	0,06
K-24	0,03	$n$	648,0	157,7	0,40	0,02
K-1	0,06	$p$	67,7	130,0	0,48	0,19
K-3	0,06	$p$	3,2	40,0	1,56	1,23
K-4	0,06	$p$	3,5	31,8	1,97	0,90

Т а б л и ц а 2

Параметры образцов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ,  
исследованных под давлением, при  $T = 4,2$  К

Образец	$x$	Тип	$\Phi \cdot 10^{-17}$ (см <sup>-2</sup> )	$n \cdot 10^{-17}$ (см <sup>-3</sup> )	$\rho \cdot 10^4$ (Ом·см)	$ R_H $ (см <sup>3</sup> /Кл)	$\mu_H \cdot 10^{-5}$ (см <sup>2</sup> /В·с)
N8	0	$n$	0	1,06	7,3	58,9	0,81
		$n$	5,73	0,27	220,0	230,0	0,105
K-22	0,03	$p$	0	0,40	47,7	158,0	0,33
		$n$	2,78	0,82	269,0	76,2	0,028

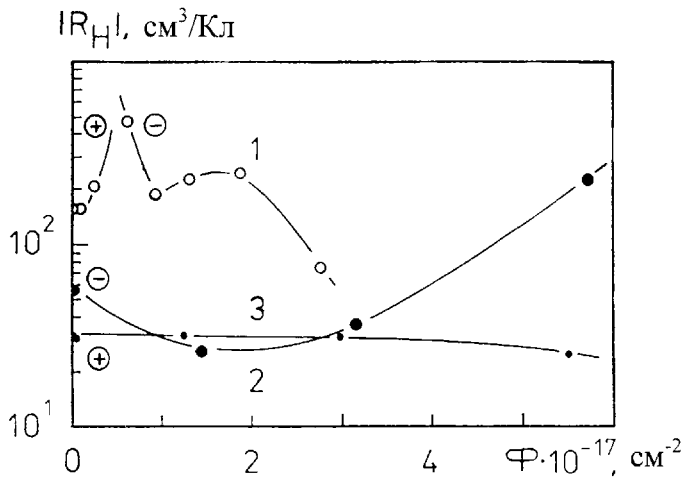


Рис. 1. Зависимости коэффициента Холла при  $T = 4,2$  К облученных электронами образцов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  от дозы облучения: 1 — образец К-22, 2 — N8 и 3 — К-4

$4,2 \leq T \leq 300$  К, а также осцилляции Шубникова-де Гааза при  $T = 4,2$  К ( $B \parallel \langle 100 \rangle$ ,  $B \leq 7$  Тл). Аналогичные измерения проведены в условиях гидростатического сжатия у облученных электронами образцов N8 ( $x = 0$ ,  $\Phi = 5,7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ) и К-22 ( $x = 0,03$ ,  $\Phi = 2,8 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ).

Для получения гидростатических давлений до 18 кбар использовалась камера высокого давления из бериллиевой бронзы, рабочий канал которой заполнялся передающей давление смесью керосин-масло-пентан. Давление измерялось при гелиевых температурах бесконтактным индукционным методом по сдвигу температуры сверхпроводящего перехода оловянной шайбы, помещенной в канал камеры высокого давления [4].

**2. Влияние облучения электронами на электрофизические свойства сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x \leq 0,06$ )**

Для сплава с  $x = 0,06$  приведенные выше предположения полностью подтвердились. Под действием электронного облучения электрофизические параметры исследованных образцов изменялись незначительно (рис. 1). Однако в образцах с  $x = 0$  и  $0,03$  уже при атмосферном давлении были получены результаты, не укладывающиеся в рамки описанной выше модели энергетического спектра облученных электронами сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$ . Установлено, что в образце  $p$ -типа при облучении электронами удельное сопротивление быстро увеличивается и проходит через максимум, а коэффициент Холла увеличивается и меняет знак на отрицательный (см. рис. 1), что соответствует уменьшению концентрации дырок и  $p$ - $n$ -конверсии при низких температурах. В образцах  $n$ -типа инверсии знака коэффициента Холла не обнаружено, удельное сопротивление и абсолютная величина коэффициента Холла при  $T = 4,2$  К проходят через минимум при увеличении потока облучения. Таким образом, во всех облученных образцах коэффициент Холла при  $T = 4,2$  К имеет отрицательный знак, но величина холловской подвижности

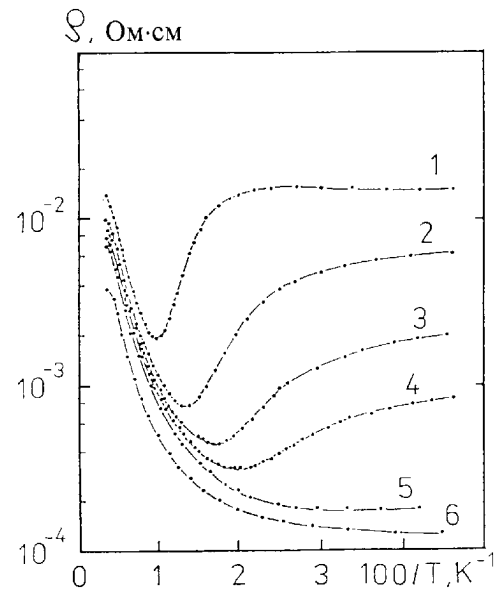


Рис. 2. Температурные зависимости удельного сопротивления облученного электронами образца N8 ( $x = 0$ ,  $\Phi = 5,7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ) при давлении  $P = 2,0$  (1); 4,4 (2); 6,0 (3); 6,9 (4); 7,7 (5) и 12,0 кбар (6)

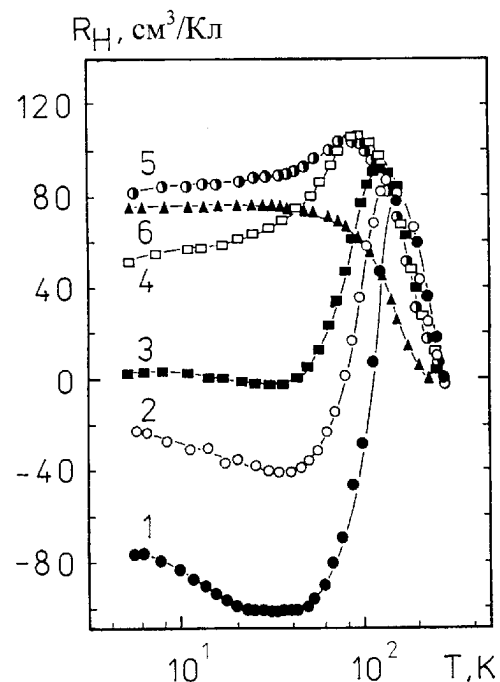


Рис. 3. Температурные зависимости коэффициента Холла облученного электронами образца К-22 ( $x = 0,03$ ,  $\Phi = 2,8 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ) при давлении 0 (1); 2,6 (2); 3,2 (3); 6,2 (4); 6,9 (5), и 14,3 кбар (6)

при гелиевых температурах заметно уменьшается и составляет  $\mu_H = (0,4 \div 1,1) \cdot 10^4 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ , что по крайней мере на порядок меньше, чем в необлученных кристаллах  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x < 0,15$ )  $n$ -типа [5].

Температурные зависимости удельного сопротивления и коэффициента Холла облученных образцов также носят аномальный характер (рис. 2, 3). При увеличении температуры в узком интервале температур ( $60 \div 120$  К) абсолютная величина коэффициента Холла быстро уменьшается и происходит сме-

на знака  $R_H$ . В этом же температурном интервале на температурных зависимостях сопротивления наблюдаются активационные участки, указывающие на возникновение глубокого уровня  $E_{t1}$  в запрещенной зоне сплавов.

### 3. Гальваномагнитные явления в облученных электронами сплавах $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ( $x \leq 0,03$ ) под давлением

Под действием давления удельное сопротивление  $\rho$  облученных образцов при  $T = 4,2$  К уменьшается и проходит через минимум в области давлений  $P = 9 \div 14$  кбар. Однако если в образце с  $x = 0,06$  зависимость  $\rho(P)$  подобна зависимостям в необлученных кристаллах и величина  $\rho$  уменьшается под действием давления не более чем вдвое, то в образцах с  $x = 0$  и  $0,03$  это уменьшение составляет уже примерно два порядка (см. рис. 2). Такое значительное изменение удельного сопротивления не может быть обусловлено только увеличением подвижности носителей заряда при переходе сплавов в бесщелевое состояние и указывает на изменение концентрации носителей заряда под действием давления.

При исследовании коэффициента Холла в облученных образцах обнаружено, что в сплаве с  $x = 0,06$  величина  $R_H$  при низких температурах практически не зависит от давления. Это указывает на неизменность концентрации носителей заряда в образце, что характерно для нелегированных и необлученных сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$ . В то же время в образцах с  $x = 0$  и  $0,03$  при увеличении давления абсолютная величина коэффициента Холла резко уменьшается, а затем происходит инверсия знака  $R_H$  (рис. 3). В области максимальных давлений коэффициент Холла выходит на насыщение и имеет положительный знак.

На температурных зависимостях коэффициента Холла точка инверсии знака  $R_H$  под действием давления сдвигается в сторону низких температур, а наклон активационных участков на зависимостях  $\ln \rho(1/T)$  монотонно уменьшается (см. рис. 2, 3). Для образца N8 ( $x = 0$ ,  $\Phi = 5,7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ) энергия активации глубокого уровня, определенная по углу наклона зависимостей  $\ln \rho(1/T)$ , при  $P = 0$  составляет  $\Delta E_{t1} \approx 35$  мэВ и монотонно уменьшается под действием давления со скоростью  $d(\Delta E_{t1})/dP \approx -4,5$  мэВ/кбар (рис. 4). При давлении  $P_k$  ( $P_k \approx 8$  кбар для PbSe и  $P_k \approx 3$  кбар для сплава  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x = 0,03$ )) энергия активации уровня обращается в нуль и происходит инверсия знака  $R_H$  при  $T = 4,2$  К. И наконец, в области давлений  $P > P_k$  зависимости  $\rho(T)$ ,  $R_H(T)$  приобретают «металлический» характер, типичный для нелегированных сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$ .

Необычный для нелегированных сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  вид имеют также зависимости холловской подвижности  $\mu_H = R_H/\rho$  облученных электронами образцов от давления. В области низких давлений ( $P < P_k$ ) подвижности электронов имеют довольно низкие для сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  значения ( $10^3 \div 10^4 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ ). Однако после инверсии типа проводимости (в «металлической» фазе)

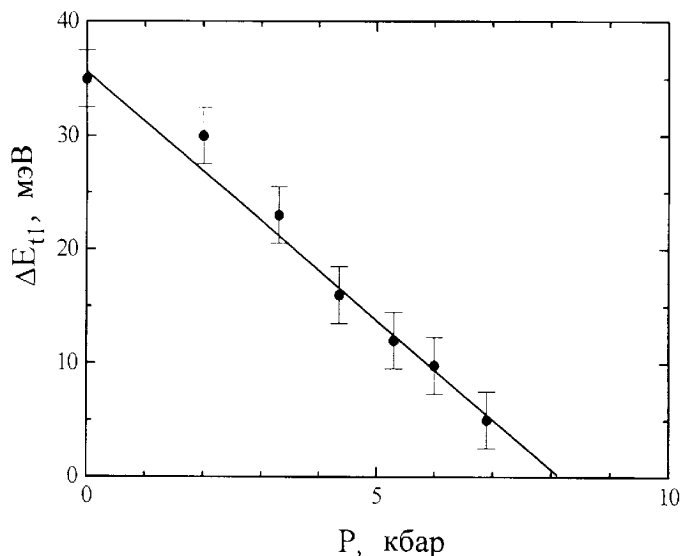


Рис. 4. Зависимость энергии активации глубокого уровня  $E_{t1}$  от давления для образца N8 ( $x = 0$ ), облученного электронами ( $\Phi = 5,7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ )

подвижность носителей заряда резко увеличивается более чем на порядок и достигает значений, типичных для нелегированных сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$ . При этом у всех исследованных образцов появляются отчетливые осцилляции магнетосопротивления в квантовых магнитных полях. В узком интервале давлений амплитуда и частота шубниковских осцилляций резко возрастают, а концентрации свободных дырок, рассчитанные по периодам осцилляций  $\Delta_{100}(1/B)$ , с точностью  $\pm 10\%$  совпадают со значениями, рассчитанными по величинам коэффициента Холла  $R_H$ , и с ростом давления выходят на насыщение.

### 4. Перестройка энергетического спектра сплавов $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ( $x \leq 0,06$ ), облученных электронами, под давлением

Анализ полученных экспериментальных данных позволяет предположить, что облучение электронами приводит к возникновению в энергетическом спектре сплавов глубокого уровня (зоны локализованных состояний)  $E_{t1}$ , расположенного над потолком валентной зоны  $L_6^+$  (рис. 5). Уровень  $E_{t1}$  частично заполнен электронами и обладает донорно-акцепторными свойствами. Поэтому при увеличении дозы облучения (при увеличении плотности состояний в зоне  $E_{t1}$ ) в образце  $n$ -типа происходит уменьшение концентрации электронов в результате перетекания электронов из зоны проводимости на уровень  $E_{t1}$ , а в образце  $p$ -типа — уменьшение концентрации дырок в результате перетекания электронов с уровня  $E_{t1}$  в валентную зону. При достаточно высоких дозах облучения независимо от исходного типа проводимости образца происходит переход в диэлектрическое состояние, в котором при низких температурах валентная зона целиком заполнена электронами, а уровень  $E_{t1}$  частично заполнен электронами. Степень

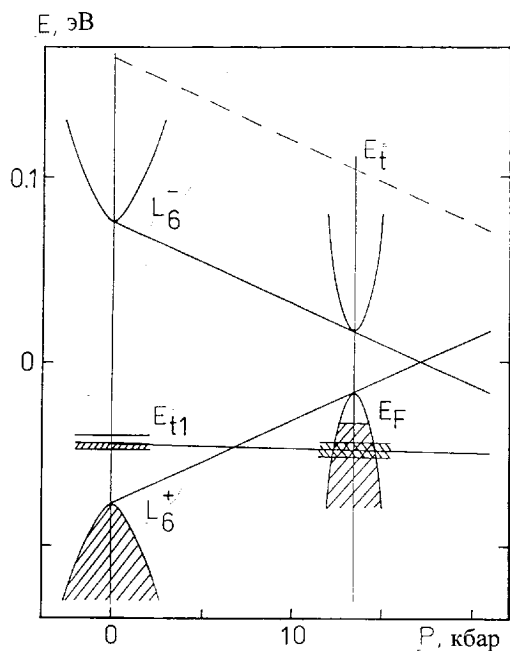


Рис. 5. Перестройка энергетического спектра PbSe, облученного электронами, под действием давления

заполнения уровня  $E_{t1}$  в диэлектрическом состоянии зависит, очевидно, от параметров исходного кристалла (концентрации носителей заряда, начальной степени заполнения радиационного уровня  $E_{t1}$ ) и дозы облучения.

Под действием давления середина зоны  $E_{t1}$  приближается к валентной зоне и пересекает потолок валентной зоны  $L_6^-$  при  $P \approx P_k$ . При этом энергия ионизации  $\Delta E_{t1}$  обращается в нуль и происходит  $n$ - $p$ -конверсия при  $T = 4,2$  К, связанная с переходом диэлектрик–металл и увеличением концентрации свободных дырок в результате перераспределения носителей заряда между валентной зоной и зоной локализованных состояний. В области максимальных давлений зона  $E_{t1}$  целиком заполнена электронами и находится в валентной зоне ниже уровня Ферми в исследованных образцах.

В рамках этой модели при атмосферном давлении и давлениях  $P < P_k$  положительный знак  $R_H$  на температурных зависимостях коэффициента Холла связан, очевидно, с термической генерацией электронов из валентной зоны на уровень  $E_{t1}$ . Отрицательный знак  $R_H$  в диэлектрической фазе при низких температурах, с нашей точки зрения, не может быть

обусловлен существованием свободных электронов в объеме образцов, так как подвижность носителей заряда в облученных образцах оказалась значительно ниже, чем в необлученных, а также в подвергнутых гидростатическому сжатию облученных образцах. Поэтому мы считаем, что в диэлектрической фазе при низких температурах основным механизмом проводимости скорее всего является поверхностная проводимость электронного типа [6].

### Заключение

Таким образом, полученные экспериментальные результаты позволяют заключить, что при электронном облучении в энергетическом спектре сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  кроме широкой зоны радиационных дефектов  $E_t$  возникает также глубокий радиационный уровень (зона)  $E_{t1}$ , энергетическое положение которого относительно краев энергетических зон в  $L$  зависит от состава сплава и давления. Облучение электронами и последующее гидростатическое сжатие облученных сплавов с  $x \leq 0,03$  индуцируют переходы металл–диэлектрик и диэлектрик–металл в результате перераспределения электронов между зоной  $E_{t1}$  и разрешенными зонами в точке  $L$  зоны Бриллюэна.

Авторы благодарны А. М. Мусалитину (Московский государственный институт стали и сплавов) за помощь в облучении исследованных образцов быстрыми электронами.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 96-02-18325 и 96-15-96500).

### Литература

1. Skipetrov E.P., Dubkov V.P., Kovalev B.B. // *Semicond. Sci. and Technol.* 1989. **4**, No. 9. P. 831.
2. Ковалев Б.Б., Скипетров Е.П. // *ФТП.* 1990. **24**, № 8. С. 1379.
3. Скипетров Е.П., Ковалев Б.Б. // *Неорг. матер.* 1992. **28**, № 12. С. 2322.
4. Jennings L.D., Swenson C.A. // *Phys. Rev.* 1958. **112**, No. 1. P. 31.
5. Брандт Н.Б., Пономарев Я.Г., Скипетров Е.П. // *ФТТ.* 1987. **29**, № 11. С. 3233.
6. Скипетров Е.П., Зверева Е.А., Ковалев Б.Б., Скипетрова Л.А. // *ФТП.* 1998. **32**, № 6. С. 663.

Поступила в редакцию  
11.02.98