1988 ФИЗИКА ТВЕРДОГО ТЕЛА Том 30, в. 1
1988 SOLID STATE PHYSICS Vol. 30, № 1

УДК 539.2

«ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫЙ» КВАНТОВЫЙ РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ В ПОЛУМЕТАЛЛАХ

В. М. Поляновский

Показано, что междузонные изоэнергетические переходы между уровнями размерного квантования электронов и дырок в полуметалле приводят к новому типу квантовых размерных осцилляций проводимости. Такие осцилляции аномально медленно затухают с ростом температуры и имеют аномально малый период. На основе предложенного механизма дана интерпретация экспериментальных результатов для проводимости тонких пленок сурьмы.

Наличие особенностей (скачков, логарифмических или корневых [1]) плотности состояний вблизи уровней размерного квантования приводит к осцилляциям кинетических коэффициентов в тонких пленках при изменении их толщины (квантовые размерные осцилляции (КРО) [2]). КРО связаны с прохождением уровня Ферми через особенности плотности состояний и быстро затухают с ростом температуры, так что для невырожденного электронного газа сопротивление является монотонной функцией толщины пленки.

Как будет показано ниже, междузонные изоэнергетические переходы между уровнями размерного квантования электронов и дырок в полуметаллах приводят к новому типу КРО, которые аномально медленно затухают с ростом температуры. Такие осцилляции могут быть названы «высокотемпературными» (ВТО). Физическая причина ВТО состоит в следующем. При изменении толщины пленки уровни размерного квантования в состояниях с разным знаком эффективной массы смещаются в противоположные стороны по шкале энергии. Вблизи резонансных значений толщины пленки становятся возможными междузонные изоэнергетические переходы электронов между особенностями плотности состояний. В отличие от КРО резонансный характер таких переходов не связан с положением уровня Ферми, что и приводит к аномально медленному температурному затуханию ВТО. Другое отличие состоит в том, что области с разными знаками эффективной массы находятся в различных точках зоны Бриллюэна, и переходы между такими точками сопровождаются большим изменением квазиимпульса, которое возможно только в результате рассеяния. Поэтому ВТО не имеют аналога для термодинамических коэффициентов, а их период существенно отличается от периода КРО.

Аномально медленно затухающие с ростом температуры осцилляции проводимости наблюдались в пленках висмута [3] и сурьмы [4]. При толщинах пленок 3000 и 300 Å соответственно осцилляции наблюдались вплоть до комнатных температур, что противоречит предсказаниям теории КРО, построенной в [5, 6]. Однако в [5, 6] не учитывались междузонные переходы, и ВТО выпали из рассмотрения.

Далее рассмотрим достаточно толстые пленки, когда заполнено большое число уровней размерного квантования. Спектр электронов и дырок $\varepsilon = \varepsilon_n^{e,h}(\mathbf{p}_\parallel)$ определяется квазиклассическим условием квантования [2] $P^{e,h}(\varepsilon, \mathbf{p}_\parallel) = 2\pi n/d$, где $\mathbf{p}_\parallel$ и $p_\perp$ — составляющие квазиимпульса вдоль и поперек плоскости пленки; $\varepsilon = \varepsilon^{e,h}(\mathbf{p})$ — закон дисперсии электронов и дырок в массивном полуметалле; $\mathbf{p} = (\mathbf{p}_{\parallel}, p_{\perp})$, $P^{e,h}(\varepsilon, \mathbf{p}_{\parallel})$ — длина хорды электронного и дырочного листов изоэнергетической поверхности $\varepsilon = \varepsilon^{e,h}(\mathbf{p})$, проходящей через точку $(\mathbf{p}_{\parallel}, 0)$ перпендикулярно плоскости пленки; $n \gg 1$; d — толщина пленки; $\hbar = 1$. Расстояние между уровнями размерного квантования $\Delta^{e,h}(\varepsilon) = \frac{2\pi}{d}\left(\frac{1}{|v_1^{e,h}|} + \frac{1}{|v_2^{e,h}|}\right)^{-1}$, где $v_{1,2}^{e,h}$ — компоненты скорости электронов (дырок) в точках пересечения изоэнергетической поверхности экстремальной хордой $P^{e,h}(\varepsilon)$. Уровни размерного квантования $\varepsilon = \varepsilon_n^{e,h}$ определяются условием $P^{e,h}(\varepsilon) = 2\pi n/d$. В соответствии со сказанным выше условие резонанса для ВТО имеет вид $\varepsilon_n^e + \varepsilon_{n'}^h = \varepsilon_\text{п}$, где $\varepsilon_\text{п}$ — величина перекрытия валентной зоны и зоны проводимости.

При $(\varepsilon^e(\mathbf{p}) - \varepsilon^h(\mathbf{p}))\ \tau \gg 1$ (τ — время релаксации) основной вклад в ток дают диагональные элементы матрицы плотности, для нахождения которых можно использовать квантовое кинетическое уравнение [7]. В случае упругого рассеяния для проводимости в плоскости пленки получим

$$\sigma_{\parallel} = e^2 \sum_{\nu} \left(\frac{\partial \varepsilon_\nu}{\partial p_{\parallel}}\right)^2 \left(-\frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon_\nu}\right) \tau_\nu, \tag{1}$$

где $\nu = \{i, \ n, \ \mathbf{p}_{\parallel}\}$ — набор квантовых чисел, определяющих состояние электрона в пленке; $i = e, \ h$; $f_0(\varepsilon) = \left(e^{\frac{\varepsilon - \zeta}{T}} + 1\right)^{-1}$ — равновесная функция распределения; ζ — химический потенциал, определяемый из условия нейтральности

$$\sum_{n, \mathbf{p}_{\parallel}} f_0(\varepsilon_n^e(\mathbf{p}_{\parallel})) = \sum_{n, \mathbf{p}_{\parallel}} [1 - f_0(\varepsilon_n^h(\mathbf{p}_{\parallel}))].$$

Время релаксации τ_ν стандартным образом выражается через вероятность перехода

$$\tau_\nu^{-1} = 2\pi N \sum_{\nu'} \sum_{\mathbf{q}} |V_{\mathbf{q}}|^2 |\langle \nu | e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} | \nu' \rangle|^2 \delta(\varepsilon_\nu - \varepsilon_{\nu'}),$$

где N — концентрация рассеивающих центров, $V_{\mathbf{q}}$ — Фурье-компонента рассеивающего потенциала.

В полуметаллах электронный и дырочный листы поверхности Ферми занимают малую часть зоны Бриллюэна, т. е. $P^{e,h}(\zeta) \ll p_0$, где $p_0 \sim a^{-1}$ — расстояние в импульсном пространстве между дном зоны проводимости и потолком валентной зоны, a — постоянная решетки. Без ограничения общности можно считать эффективный радиус $r_\text{эф}$ рассеивающего потенциала достаточно малым ($r_\text{эф} \ll 1/P^{e,h}(\zeta)$) и пренебречь слабой зависимостью $V_{\mathbf{q}}$ при изменениях $\mathbf{q}$ порядка фермиевского импульса, полагая $V_{P^{e,h}(\zeta)} \approx V_0$ и $V_{p_0 \pm P^{e,h}(\zeta)} \approx V_{p_0}$. Если при этом $r_\text{эф} > a$, то $|V_{p_0}|^2 \ll |V_0|^2$. Поскольку выход за рамки квадратичного закона дисперсии не приводит к качественно новым особенностям ВТО, то ля конкретных расчетов используем простую параболическую модель для электронов и дырок в полуметалле [5] $\varepsilon^e(\mathbf{p}) = p^2/2m_e$ и $\varepsilon^h(\mathbf{p}) = \varepsilon_\text{п} - \frac{(\mathbf{p} - \mathbf{p}_0)^2}{2m_h}$. Тогда при соответствующем выборе волновых функций получим $\varepsilon_n^e(\mathbf{p}_{\parallel}) = n^2\varepsilon_0^e + p_{\parallel}^2/2m_e$, $\varepsilon_n^h(\mathbf{p}_{\parallel}) = \varepsilon_\text{п} - n^2\varepsilon_0^h - p_{\parallel}^2/2m_h$, $P^e(\varepsilon) = 2\sqrt{2m_e\varepsilon}$, $P^h(\varepsilon) = 2 \times \sqrt{2m_h(\varepsilon_\text{п} - \varepsilon)}$, $\Delta^e(\varepsilon) = 2\sqrt{\varepsilon_0^e\varepsilon}$, $\Delta^h(\varepsilon) = 2\sqrt{\varepsilon_0^h(\varepsilon_\text{п} - \varepsilon)}$, $\varepsilon_0^{e,h} = \pi^2/2m_{e,h}d^2$. Имея в виду реальную ситуацию, исследуем более подробно характер температурного затухания ВТО при $\varepsilon_0^{e,h}$; $T \ll \zeta_{e,h}$, где $\zeta_e = \zeta$, $\zeta_h = \varepsilon_\text{п} - \zeta$. При этом условии электронный газ вырожден и заполнено большое число уровней размерного квантования. Проводя в (1) суммирование по формуле Пуассона, в сделанных предположениях получим $\sigma_{\parallel} = \sigma_0 + \sigma_\text{КРО}^e + \sigma_\text{КРО}^h + \sigma_\text{ВТО}^{eh}$, где

σ_0 — проводимость массивного полуметалла, $\sigma^{e,h}_{\text{КРО}}$ и $\sigma^{eh}_{\text{ВТО}}$ описывают КРО и ВТО соответственно

$$\sigma^{e,h}_{\text{КРО}} = -\frac{1}{\pi}\sigma_0 \frac{m^2_{h,e}}{m^2_e + m^2_h} \sqrt{\frac{\varepsilon^e_0 + \varepsilon^h_0}{\varepsilon_\text{п}}} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{1}{k} A\left(\frac{2\pi^2 kT}{\Delta^{e,h}(\zeta)}\right) \sin\left(kP^{e,h}(\zeta)\, d\right), \tag{2}$$

$$\sigma^{eh}_{\text{ВТО}} = \frac{\alpha}{\pi^2}\sigma_0 \frac{m^4_e + m^4_h}{m_e m_h (m^2_e + m^2_h)} \frac{\varepsilon^e_0 + \varepsilon^h_0}{\varepsilon_\text{п}} \sum_{k,k'=1}^{\infty} \frac{1}{kk'}\left[A\left(\frac{2\pi^2 T}{\Delta^+_{kk'}(\zeta)}\right)\cos\left(P^-_{kk'}(\zeta)\, d\right) - A\left(\frac{2\pi^2 T}{\Delta^-_{kk'}(\zeta)}\right)\cos\left(P^+_{kk'}(\zeta)\, d\right)\right]. \tag{3}$$

$$A(x) = x/\operatorname{sh} x, \quad \alpha = |V_{p_0}|^2/|V_0|^2, \quad \frac{1}{\Delta^{\pm}_{kk'}(\zeta)} = \left|\frac{k}{\Delta^e(\zeta)} \pm \frac{k'}{\Delta^h(\zeta)}\right|,$$
$$P^{\pm}_{kk'}(\zeta) = kP^e(\zeta) \pm k'P^h(\zeta).$$

Результат (2) соответствует полученному в [6] для линейной проводимости. Согласно (3), амплитуда ВТО пропорциональна отношению внутризонного и междузонного времен релаксации $\alpha = |V_{p_0}|^2/|V_0|^2 \sim \tau_e\tau_h/(\tau_e + \tau_h)\,\tau_{eh} \ll 1$.

Согласно (2), КРО содержат две серии осцилляций с периодами $\Delta d^{e,h}_{\text{КРО}} = 2\pi/kP^{e,h}(\zeta)$. При $T \gtrsim \Delta^{e,h}(\zeta)$ амплитуда k-й гармоники КРО затухает с ростом температуры $\sim \exp(-2\pi^2 kT/\Delta^{e,h}(\zeta))$. Согласно (3), ВТО также содержат осцилляции двух периодов $\Delta d^{\pm}_{\text{ВТО}} = 2\pi/|P^{\mp}_{kk'}(\zeta)|$, которые с ростом температуры при $T \gtrsim \Delta^{\pm}_{kk'}(\zeta)$ убывают $\sim \exp(-2\pi^2 T/\Delta^{\pm}_{kk'}(\zeta))$. Поскольку $\Delta^+_{kk'} < \Delta^e/k$, Δ^h/k', то длиннопериодные ВТО затухают быстрее, чем КРО. Для короткопериодных ВТО наиболее медленно затухают с ростом температуры и соответственно дают основной вклад в ВТО гармоники, для которых $\Delta^-_{kk'}(\zeta)$ максимально, т. е. $k\Delta^h(\zeta) \approx k'\Delta^e(\zeta)$. Период осцилляций этих гармоник $\Delta d^-_{\text{ВТО}} \approx 2\pi/k'P^h(\zeta)\,(1+\zeta_e/\zeta_h) \approx 2\pi/kP^e(\zeta)\,(1+\zeta_h/\zeta_e)$. При $\Delta^-_{kk'} > T \gtrsim \Delta^{e,h}$ амплитуда наиболее медленно затухающих гармоник ВТО может превышать амплитуду гармоник КРО в $\alpha\sqrt{\frac{\varepsilon^e_0 + \varepsilon^h_0}{\varepsilon_\text{п}}}\exp(2\pi^2 T/\Delta^{e,h}(\zeta))$ раз. Амплитуда ВТО в этой ситуации экспоненциально велика по сравнению с амплитудой КРО.

Скорость температурного затухания гармоник КРО и ВТО определяется частотой осцилляций плотности состояний как функции энергии. С ростом температуры среднее значение осциллирующей части плотности состояний на интервале температурного размытия уровня Ферми резко падает, а амплитуда КРО и ВТО экспоненциально убывает. КРО связаны с переходами носителей из (в) особенности плотности состояний, т. е. КРО определяются наложением монотонной и осциллирующей составляющих плотности состояний. Частота осцилляций последней велика ($\sim 1/\Delta^{e,h}(\zeta)$), и КРО быстро затухают с ростом температуры. В отличие от КРО ВТО связаны с переходами носителей между особенностями плотности состояний, т. е. определяются наложением осциллирующих частей электронной и дырочной плотности состояний. При этом возникают осцилляции плотности состояний на комбинационных частотах ($\sim 1/\Delta^{\pm}_{kk'}(\zeta)$), как бóльших (длиннопериодные), так и меньших (короткопериодные ВТО) обратных расстояний между уровнями размерного квантования. Соответственно скорость температурного затухания гармоник ВТО резко возрастает или падает по сравнению с гармониками КРО.

С ростом температуры при $T > T_{kk'}(\zeta)$ для k, k'-й гармоники ВТО могут проявиться эффекты, связанные с неэквидистантностью уровней размерного квантования. Здесь

$$T_{kk'}(\zeta) = \left|\left(\frac{\partial}{\partial\zeta}\ln\Delta^-_{kk'}(\zeta)\right)^{-1}\right| = \frac{2}{\Delta^-_{kk'}}\left(\frac{k}{\Delta^e\zeta_e} + \frac{k'}{\Delta^h\zeta_h}\right)^{-1}.$$

Существенное отличие от КРО состоит в том, что для наиболее медленно затухающих гармоник ВТО такие эффекты могут проявиться даже в случае сильно вырожденного электронного газа ($T_{kk'}(\zeta) \lesssim T \ll \zeta_{e,h}$). В КРО эти эффекты проявляются при гораздо более высоких температурах, когда вырождение частично снимается ($T \gtrsim \zeta_{e,h}$) [8]. В результате получим при $T \sim T_{kk'}(\zeta) \ll \zeta_{e,h}$

$$\sigma^{eh}_{\text{ВТО}} = -\frac{2a}{\pi^2}\sigma_0 \frac{m_e^4 + m_h^4}{m_e m_h (m_e^2 + m_h^2)} \frac{\varepsilon_0^e + \varepsilon_0^h}{\varepsilon_\text{п}} \sum_{k, k'=1}^{\infty} \frac{1}{kk'} \times$$

$$\times \sum_{n=0}^{\infty} \left\{ a_{kk'} T_{kk'}(\zeta)\, T \left(1 + \left((2n+1)\pi \frac{T}{T_{kk'}(\zeta)}\right)^2\right)^{1/2} \exp\left[-(2n+1)\, a_{kk'} T_{kk'}(\zeta)\, T\right] \times \right.$$

$$\times \cos\left(P^+_{kk'}(\zeta)\, d + \varphi_n(T, d)\right) + (-1)^{n-1}\, n \sqrt{\frac{2\pi^2}{a_{kk'} T^2}} \exp\left(-n\frac{T_{kk'}(\zeta)}{T}\right) \times$$

$$\left. \times \cos\left(\tilde{P}^+_{kk'}(\zeta)\, d - \tilde{\varphi}_n(T, d) - \frac{\pi}{4}\right) \right\},$$

$$a_{kk'} = \frac{\pi d}{\sqrt{2}}\left(k \frac{\sqrt{m_e}}{\zeta_e^{3/2}} + k' \frac{\sqrt{m_h}}{\zeta_h^{3/2}}\right); \quad \varphi_n(T, d) = \arccos\left[1 + ((2n+1)\pi T / T_{kk'}(\zeta))^2\right]^{-1/2} +$$

$$+ (2n+1)\frac{\pi}{2} a_{kk'} T^2; \quad \tilde{P}^+_{kk'}(\zeta) = P^+_{kk'}(\zeta) + \frac{\pi}{d}\frac{T_{kk'}(\zeta)}{\Delta^-_{kk'}(\zeta)}; \quad \tilde{\varphi}_n(T, d) = n^2\pi / 2a_{kk'} T^2.$$

Таким образом, неэквидистантность уровней размерного квантования приводит, во-первых, к зависимости периода и фазы ВТО от температуры, не связанной с температурной зависимостью химического потенциала $\zeta(T)$. Во-вторых, появляется дополнительная серия ВТО, амплитуда которой при $T < T_{kk'}(\zeta)$ растет с ростом температуры (если не учитывать зависимость $\zeta(T)$). Учет зависимости $\zeta(T)$ может приводить к немонотонной температурной зависимости амплитуды наиболее медленно затухающих гармоник ВТО, которые имеют максимум при $T_{kk'}(\zeta) \to 0$. При этом периоды основной и дополнительной серий ВТО практически совпадают. Физическая причина появления дополнительной серии ВТО состоит в следующем. При $T_{kk'}(\zeta) \lesssim \Delta^{e,h}(\zeta)$ имеем $T_{kk'}(\zeta) \approx |\varepsilon_{kk'} - \zeta|$ и $\tilde{P}^+_{kk'}(\zeta) \approx P^+_{kk'}(\varepsilon_{kk'})$, где $\varepsilon_{kk'}$ — энергия, определяемая условием $1/\Delta^-_{kk'}(\varepsilon_{kk'}) = 0$. Вблизи энергии $\varepsilon_{kk'}$ осцилляции плотности состояний электронов и дырок гасят друг друга, в результате чего вероятность междузонных переходов с этой энергией резко возрастает. С ростом температуры при $T < T_{kk'}(\zeta)$ число электронов (дырок) с энергией $\varepsilon_{kk'}$ изменяется $\sim \exp(-|\varepsilon_{kk'} - \zeta|/T)$ и амплитуда осцилляций растет. Период дополнительной серии ВТО определяется экстремальными хордами изоэнергетической поверхности $\varepsilon = \varepsilon_{kk'}$.

Выход за рамки изотропной модели может приводить к немонотонной зависимости периода ВТО от ориентации плоскости пленки относительно кристаллографических осей. Покажем это на простом примере. Пусть при ориентации нормали к пленке $\mathbf{n}$ вдоль некоторой оси C $\Delta^e \approx \Delta^h$ и с ростом угла $\theta = (\text{ось } C, \mathbf{n})$ отношение эффективных масс вдоль нормали к пленке $m_e(\theta)/m_h(\theta)$ уменьшается. Тогда при $\mathbf{n} \parallel C$ основной вклад в ВТО дает гармоника $k = k' = 1$ с периодом $\Delta d^-_{11}(0) = \frac{\pi}{\sqrt{2m_h(0)\,\varepsilon_0}}$, где $\varepsilon_0 = \varepsilon_\text{п}^2/\zeta_h$. При увеличении θ период осцилляций $\Delta d^-_{11}(\theta)$ растет из-за быстрого уменьшения экстремальной хорды электронного эллипсоида, а амплитуда гармоники падает в связи с ростом $T_{11}(\theta)$. При приближении к углу θ_2, который определяется соотношением $\Delta^e(\theta_2) = 2\Delta^h(\theta_2)$ (т. е. $T_{21}(\theta_2) = 0$), основной вклад в ВТО начинает давать гармоника $k = 2$, $k' = 1$ с периодом $\Delta d^-_{21}(\theta_2) = \sqrt{\frac{m_h(0)}{m_h(\theta_2)}}\, \Delta d^-_{11}(0)$, и в результате период ВТО резко уменьшается. Затем период ВТО снова растет, а следующее его уменьшение происходит вблизи угла θ_3, который определяется соотношением $\Delta^e(\theta_3) = 3\Delta^h(\theta_3)$, причем $\Delta d^-_{31}(\theta_3) = \sqrt{\frac{m_h(0)}{m_h(\theta_3)}}\, \Delta d^-_{11}(0)$ и т. д. Таким образом, при изменении ориентации плоскости пленки период ВТО осциллирует вблизи среднего значения, определяемого угловой зависимостью обратного фермиевского импульса поперек пленки.

Построенная выше теория позволяет связать аномально малый период осцилляций в сурьме [4] с периодом гармоники $k=k'=1$ ВТО. Высшие гармоники ВТО не дают вклада в проводимость из-за значительного нетемпературного уширения уровней размерного квантования в сурьме, уменьшающего амплитуду k, k'-й гармоники в $\exp(-2\pi/\Delta^{+}_{kk'}(\zeta)\,\tau)$ раз. При $P^e(\zeta)=10^{-25}$ кг·м/с, $P^h(\zeta)=1.2\cdot10^{-25}$ кг·м/с, $\zeta_e=100$ мэВ, $\zeta_h=80$ мэВ [2], $d=300$ Å получим $\Delta^{-}_{11}(\zeta)=\frac{\Delta^e(\zeta)\,\Delta^h(\zeta)}{\Delta^e(\zeta)-\Delta^h(\zeta)}=84$ мэВ и $\Delta d^{-}_{\text{ВТО}}=\frac{2\pi}{P^e(\zeta)+P^h(\zeta)}=28$ Å в хорошем согласии с экспериментальными данными (100 мэВ и 25 Å). В висмуте $\zeta_e=29$ и $\zeta_h=12$ мэВ, так что при комнатной температуре вырождение электронного газа снимается. Обобщение теории ВТО на этот случай будет проведено в следующей публикации.

Литература

[1] *Каганов М. И., Недорезов С. С., Рустамова А. Н.* ФТТ, 1970, т. 12, № 8, с. 2277—2285.

[2] *Комник Ю. Ф.* Физика металлических пленок. М.: Атомиздат, 1979. 262 с.

[3] *Комник Ю. Ф., Бухштаб Е. И., Никитин Ю. В., Андриевский В. В.* ЖЭТФ, 1971, т. 60, № 2, с. 669—687.

[4] *Комник Ю. Ф., Бухштаб Е. И., Никитин Ю. В.* ФТТ, 1970, т. 12, № 3, с. 793—798.

[5] *Сандомирский В. Б.* ЖЭТФ, 1967, т. 52, № 1, с. 158—166.

[6] *Кулик И. О.* Письма в ЖЭТФ, 1967, т. 5, № 7, с. 423—425.

[7] *Кон В., Люттингер Дж.* В кн.: Вопросы квантовой теории необратимых процессов. М.: ИЛ, 1961, с. 121—169.

[8] *Недорезов С. С.* ЖЭТФ, 1970, т. 59, № 10, с. 1353—1362.

Запорожский машиностроительный институт им. В. Я. Чубаря
Запорожье

Поступило в Редакцию
17 июня 1987 г.