

# Переход диэлектрик–металл под действием давления в сплавах $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ( $x \leq 0.03$ ), облученных электронами

© Е.П. Скипетров, Е.А. Зверева, Б.Б. Ковалев, Л.А. Скипетрова

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,  
119899 Москва, Россия

(Получена 11 августа 1997 г. Принята к печати 16 октября 1997 г.)

Исследованы гальваномагнитные эффекты ( $B \leq 7$  Тл) в сплавах  $n$ - и  $p$ - $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x \leq 0.03$ ), облученных электронами ( $T \approx 300$  К,  $E = 6$  МэВ,  $\Phi \leq 5.7 \cdot 10^{17}$  см<sup>-2</sup>), в окрестности перехода диэлектрик–металл, индуцированного давлением ( $P \leq 18$  кбар). В рамках двухзонной модели рассчитаны полевые зависимости коэффициента Холла, удовлетворительно согласующиеся с экспериментальными данными, и определены основные параметры носителей заряда в облученных сплавах. Показано, что в металлической фазе происходит увеличение концентрации дырок под действием давления, связанное с движением энергетических зон в точке  $L$  зоны Бриллюэна, и перетеканием электронов из валентной зоны в зону резонансных состояний  $E_{t1}$ , индуцированную электронным облучением; оценены параметры этой зоны.

## 1. Введение

В настоящее время известно, что электронное облучение сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  приводит к появлению в энергетическом спектре сплавов двух радиационных уровней (зон радиационных дефектов)  $E_t$  и  $E_{t1}$ , связанных, по видимому, с 2 типами радиационных дефектов [1,2]. Основные параметры зоны  $E_t$  (скорость генерации дефектов, энергетическое положение и структура зоны) практически для всей области существования кубической фазы сплавов ( $0.07 \leq x \leq 0.34$ ) хорошо известны. В то же время информации об уровне  $E_{t1}$  намного меньше.

В частности, установлено [3,4], что положение радиационного уровня  $E_{t1}$  на энергетической шкале зависит от состава сплава и давления (рис. 1). В  $PbSe$  уровень  $E_{t1}$  находится в запрещенной зоне вблизи потолка валентной зоны  $L_6^+$ . С ростом содержания Sn в сплаве уровень почти не изменяет своего положения относительно середины запрещенной зоны, двигаясь относительно терма  $L_6^+$  примерно по линейному закону:

$$E_{t1} [\text{мэВ}] = E(L_6^+) + 35 - 600x.$$

Таким образом, в сплавах с концентрацией олова  $x < 0.06$  середина зоны  $E_{t1}$  расположена в запрещенной зоне, а при  $x > 0.06$  попадает в пределы валентной зоны.

Зона  $E_{t1}$  обладает донорно-акцепторными свойствами. Поэтому электронное облучение кристаллов с  $x < 0.06$  вызывает уменьшение концентрации носителей заряда как в образцах  $n$ -, так и в образцах  $p$ -типа. При достаточно больших потоках облучения происходит переход в диэлектрическое состояние, в котором уровень Ферми "мягко" стабилизируется частично заполненной электронами зоной радиационных дефектов. Гидростатическое сжатие облученных кристаллов приводит к сближению зоны  $E_{t1}$  с потолком валентной зоны и переходу диэлектрик–металл, связанному с перетеканием электронов из валентной зоны в зону радиационных дефектов (рис. 1).

Характер зависимостей удельного сопротивления и коэффициента Холла облученных образцов от давле-

ния [3,4] свидетельствует о сосуществовании по меньшей мере 2 механизмов проводимости в окрестности перехода диэлектрик–металл. Необходимо отметить также, что в окрестности перехода значительные изменения параметров носителей заряда происходят в достаточно широком диапазоне давлений. Это обстоятельство указывает на конечную ширину зоны  $E_{t1}$ . Однако ширина и структура зоны радиационных дефектов, а также скорость генерации радиационных дефектов при облучении пока не известны.

Для получения информации о механизмах проводимости в облученных электронами сплавах и для определения основных параметров зоны радиационных дефектов  $E_{t1}$  в настоящей работе исследованы полевые зависимости коэффициента Холла облученных электронами сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x \leq 0.03$ ) в окрестности перехода диэлектрик–металл, индуцированного давлением.

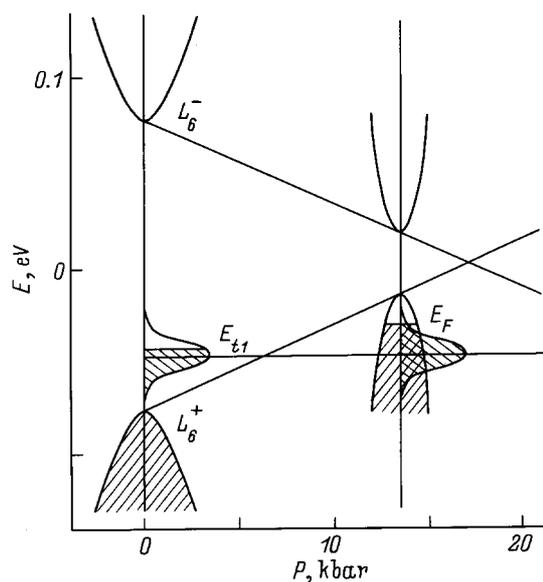


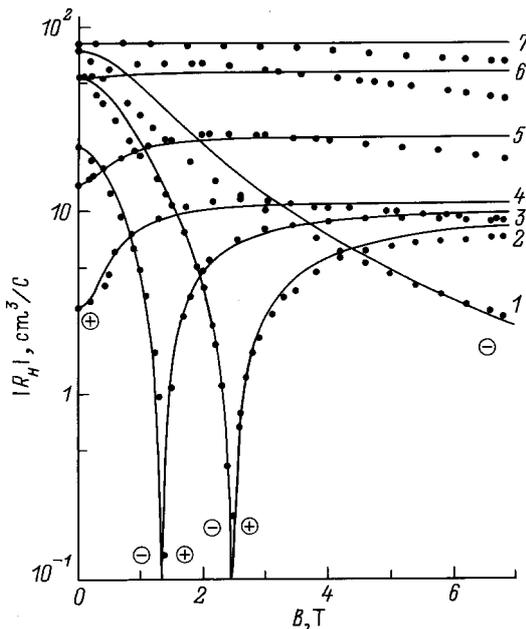
Рис. 1. Модель перестройки под давлением энергетического спектра  $n$ - $PbTe$ , облученного электронами.

Параметры образцов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$ , исследованных под давлением при  $T = 4.2$  К

Образец	$x$	Тип проводимости	Поток облучения $\Phi$ , $10^{17} \text{ см}^{-2}$	Концентрация электронов $n$ , $10^{17} \text{ см}^{-3}$	Удельное сопротивление $\rho$ , $10^{-4} \text{ Ом} \cdot \text{см}$	Подвижность $\mu_H$ , $10^5 \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$
N8	0	$n$	0	1.06	7.3	0.81
		$p$	5.7	0.27	220.0	0.105
К-22	0.33	$p$	0	0.40	47.7	0.31
		$n$	2.8	0.82	269.0	0.028

## 2. Образцы. Методика измерений

Монокристаллические образцы  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x = 0, 0.03$ ) с исходными концентрациями электронов или дырок  $n, p = (0.4 \div 1.6) \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$  облучались при комнатной температуре на линейном ускорителе электронов ЭЛУ-6 ( $E = 6 \text{ МэВ}$ ,  $\Phi \leq 5.7 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ). У облученных кристаллов при атмосферном давлении и в условиях гидростатического сжатия исследовались удельное сопротивление и полевые зависимости коэффициента Холла ( $B \leq 7 \text{ Тл}$ ) при  $T = 4.2 \text{ К}$ . Параметры исследованных под давлением образцов до и после облучения максимальными потоками электронов приведены в таблице. Гидростатические давления до 18 кбар были получены в камере из термообработанной бериллиевой бронзы. В качестве среды, передающей давление, использовалась смесь керосин–масло–пентан.



**Рис. 2.** Полевые зависимости коэффициента Холла  $R_H$  при  $T = 4.2 \text{ К}$  для образца К-22 ( $\Phi = 2.8 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ) в окрестности перехода диэлектрик–металл под действием давления:  $P$ , кбар: 1 — 0.9, 2 — 1.4, 3 — 2.6, 4 — 3.2, 5 — 4.2, 6 — 6.2, 7 — 18.2. Сплошные линии — расчет в соответствии с соотношениями (1)–(3).

## 3. Полевые зависимости коэффициента Холла в окрестности перехода диэлектрик–металл

Установлено, что уже при атмосферном давлении коэффициент Холла  $R_H$  облученных электронами образцов сильно зависит от величины магнитного поля и абсолютная величина  $R_H$  уменьшается более чем на порядок в исследованном диапазоне магнитных полей (рис. 2). Гидростатическое сжатие приводит к более резкому уменьшению  $R_H$  и к инверсии знака коэффициента Холла при увеличении магнитного поля. С ростом давления точка инверсии знака  $R_H$  смещается в сторону слабых магнитных полей, а после перехода в металлическую фазу ( $P > P^*$ ) коэффициент Холла имеет положительный знак, увеличиваясь с ростом магнитного поля. И, наконец, в области максимальных давлений зависимость коэффициента Холла от магнитного поля практически отсутствует.

Характер полевых зависимостей коэффициента Холла в исследованных образцах подтверждает предположение о сосуществовании по крайней мере 2 типов носителей заряда противоположного знака в облученных электронами сплавах  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x = 0; 0.03$ ). Появление точки инверсии знака  $R_H$  и изменение вида зависимостей  $R_H(B)$  при гидростатическом сжатии облученных кристаллов указывает, очевидно, на изменение параметров носителей заряда и смену основного механизма проводимости при переходе диэлектрик–металл. Для определения основных параметров носителей заряда в облученных образцах в рамках двухзонной модели проведены расчеты полевых зависимостей коэффициента Холла в исследованных образцах [5,6]:

$$R_H = \frac{\sum \sigma_k \mu_k / (1 + \mu_k^2 B^2)}{[\sum \sigma_k / (1 + \mu_k^2 B^2)]^2 + [\sum \sigma_k \mu_k B / (1 + \mu_k^2 B^2)]^2}, \quad (1)$$

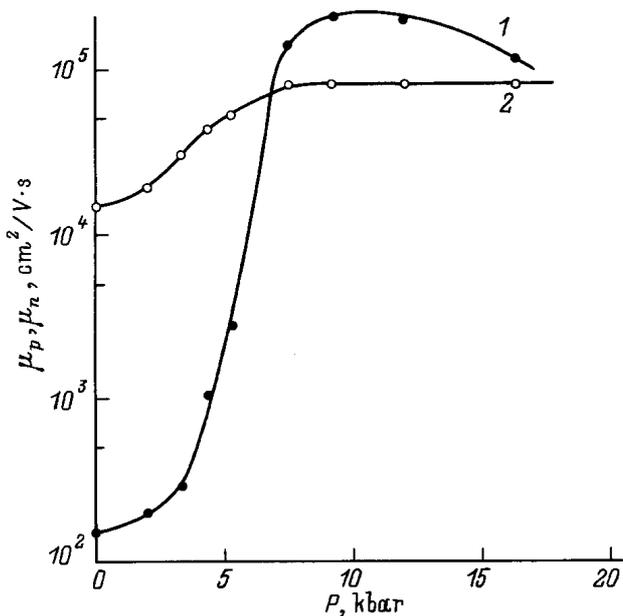
$$1/\rho = \sum \sigma_k = \sum e_k n_k \mu_k, \quad (2)$$

где  $e_k$ ,  $n_k$ ,  $\sigma_k$  и  $\mu_k$  — заряд, концентрация, удельная электропроводность и подвижность для каждого типа носителей заряда, обозначенных индексом  $k$ . В пределе слабых магнитных полей ( $\mu_k B \ll 1$ ) выражение для коэффициента Холла принимает вид

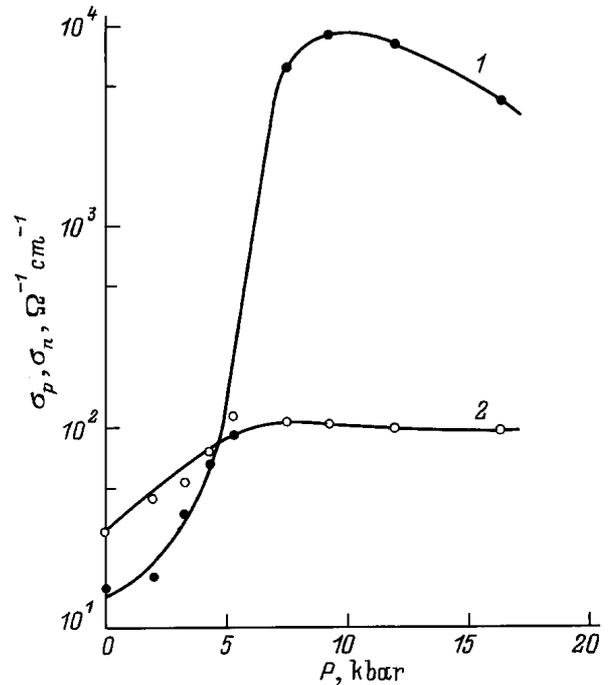
$$R_H = \frac{\sum e_k n_k \mu_k^2}{(\sum e_k n_k \mu_k)^2}. \quad (3)$$

Определение параметров носителей заряда проводилось путем подгонки зависимостей (1) к экспериментальным данным (рис. 2). Программа расчета предусматривала вариацию только 2 параметров модели (обычно подвижностей носителей заряда). Два других параметра модели (обычно удельные электропроводности  $\sigma_k$ ) определялись прямым расчетом по величинам коэффициента Холла в слабом магнитном поле (3) и удельного сопротивления при  $T = 4.2K$  (2). Рассчитанные таким образом зависимости  $R_H(B)$  удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными во всем исследованном диапазоне давлений и магнитных полей (см. рис. 2).

Результаты расчета параметров носителей заряда для одного из исследованных образцов представлены на рис. 3, 4. Анализ этих зависимостей показывает, что с ростом давления подвижность электронов в облученных образцах заметно увеличивается и достигает значений  $\mu_n = (1.5 \div 8) \cdot 10^4$   $cm^2/V \cdot s$ . Эти значения подвижностей примерно на порядок меньше значений, характерных для зонной проводимости, тем не менее они слишком велики для проводимости по локализованным состояниям и скорее всего отвечают поверхностной проводимости электронного типа. Поведение электронной проводимости  $\sigma_n$  под давлением указывает, по-видимому, на заметное уменьшение концентрации электронов в поверхностном слое облученных кристаллов под действием давления. Изменения параметров электронов происходят в основном в диэлектрической фазе, а после перехода в металлическую фазу зависимости  $\mu_n(P)$  и  $\sigma_n(P)$  выходят на насыщение. Это обстоятельство позволяет предположить, что изменения параметров электронов в поверхностном слое обусловлены изменением положения уровня Ферми относительно потолка валентной зоны.



**Рис. 3.** Зависимости подвижностей дырок  $\mu_p$  (1) и электронов  $\mu_n$  (2) в облученном электронами образце N8 ( $\Phi = 5.7 \cdot 10^{17} cm^{-2}$ ) от давления.



**Рис. 4.** Зависимости удельных электропроводностей дырок  $\sigma_p$  (1) и электронов  $\sigma_n$  (2) в облученном электронами образце N8 ( $\Phi = 5.7 \cdot 10^{17} cm^{-2}$ ) от давления.

Электропроводность и подвижность дырок изменяются под давлением согласованным образом, быстро увеличиваясь на несколько порядков в окрестности перехода диэлектрик–металл. В области максимальных давлений подвижность дырок достигает типичных для зонной проводимости в сплавах  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  величин  $\mu_p = (1 \div 2.5) \cdot 10^5$   $cm^2/V \cdot s$ . В то же время при атмосферном давлении подвижность дырок составляет лишь  $\mu_p \approx 2 \cdot 10^2$   $cm^2/V \cdot s$ . Столь низкие значения подвижности дырок наблюдались ранее в диэлектрической фазе облученных электронами сплавов  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x = 0.125, 0.25$ ) [6] при проводимости по зоне радиационных дефектов  $E_t$ , находящейся в пределах запрещенной зоны. Поэтому величины  $\mu_p$  и  $\sigma_p$ , рассчитанные в соответствии с (1), (2), являются, очевидно, эффективными значениями и учитывают как вклад дырочной проводимости по зоне локализованных состояний  $E_{t1}$ , так и вклад проводимости по валентной зоне.

Таким образом, в облученных электронами сплавах  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x = 0; 0.03$ ) при перестройке энергетического спектра под действием давления необходимо, по-видимому, учитывать существование трех механизмов проводимости. В областях низких давлений (в диэлектрической фазе) доминирующими механизмами являются поверхностная проводимость электронного типа и дырочная проводимость по зоне радиационных дефектов, а в окрестности перехода диэлектрик–металл–дырочная зонная проводимость и электронная проводимость по поверхности.

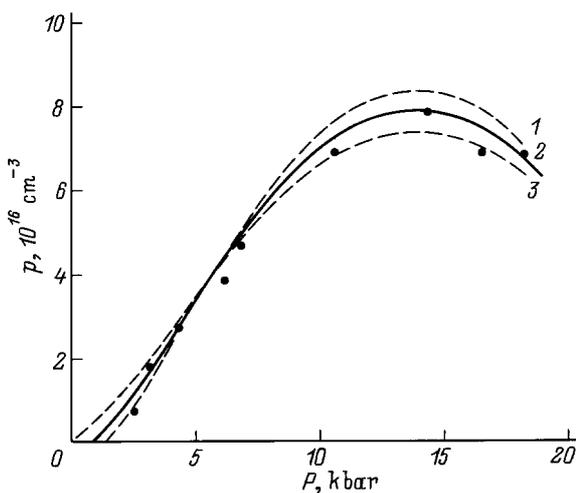
#### 4. Зависимости концентрации дырок от давления в окрестности перехода диэлектрик–металл и параметры зоны $E_{t1}$

Представленные выше результаты позволяют построить зависимость концентрации дырок от давления после перехода облученных сплавов в металлическую фазу, используя двухзонную модель. Такого типа зависимости могут быть получены несколькими способами. Во-первых, концентрацию дырок можно рассчитать в рамках двухзонной модели (2, 3), используя зависимости  $\rho(P)$  и  $R_H(P)$  в слабом магнитном поле. При этом в качестве удельной проводимости и подвижности электронов в поверхностном слое можно для простоты выбрать фиксированные значения (например, предельные подвижности и проводимости для каждого образца при атмосферном давлении) или зависимости  $\mu_n(P)$ ,  $\sigma_n(P)$ , рассчитанные выше (рис. 3, 4). Во-вторых, можно непосредственно рассчитать концентрацию дырок

$$p(P) = \sigma_p(P) / e\mu_p(P),$$

используя полученные из полевых зависимостей коэффициента Холла данные об изменении удельной электропроводности  $\sigma_p(P)$  и подвижности дырок  $\mu_p(P)$  под давлением (рис. 3, 4).

Анализ показал, что независимо от способа расчета после перехода в металлическую фазу концентрация дырок быстро увеличивается, проходит через максимум и монотонно убывает с ростом давления (рис. 5). Такое поведение качественно согласуется с теоретическими представлениями о перестройке энергетического спектра под давлением (рис. 1) и позволяет оценить параметры



**Рис. 5.** Зависимости концентрации дырок при  $T = 4.2$  К в облученном электронами образце К-22 ( $\Phi = 2.8 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-2}$ ) от давления. Линии 1–3 — расчет по модели (4)–(6) при  $\Delta E_{t1} = 17$  мэВ,  $\sigma = 15$  мэВ и вариации концентрации радиационных дефектов: 1 —  $N_{t1} = 1.45 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ , 2 —  $N_{t1} = 1.25 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ , 3 —  $N_{t1} = 1.05 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ .

зоны радиационных дефектов  $E_{t1}$  путем сравнения экспериментальных и теоретических зависимостей концентрации дырок от давления.

При построении теоретических зависимостей предполагалось, что генерация радиационных дефектов при облучении приводит к возникновению наполовину заполненных состояний в зоне радиационных дефектов; положение середины зоны  $E_{t1}$  относительно середины запрещенной зоны не изменяется под действием давления [3,4]:

$$E_{t1} - E_v = \Delta E_{t1} [\text{мэВ}] = 35 - 600x - 4.25P [\text{кбар}];$$

функция плотности состояний в зоне радиационных дефектов  $g_{t1}(E)$  описывается гауссовской кривой, а скорость генерации дефектов  $dN_{t1}/d\Phi$  не зависит от потока облучения. Поскольку из экспериментальных данных следует, что при гидростатическом сжатии концентрация дырок увеличивается за счет перетекания электронов из валентной зоны в зону радиационных дефектов, предполагалось также, что при любых давлениях  $P$  сумма концентраций дырок в валентной зоне  $p(P)$  и в зоне радиационных дефектов  $p_{t1}(P)$  равна исходной концентрации незаполненных состояний в зоне  $E_{t1}$  при атмосферном давлении  $p_{t1}(0)$ :

$$p_{t1}(0) = p(P) + p_{t1}(P), \quad (4)$$

$$p_{t1}(P) = \int_{E_F}^{\infty} g_{t1}(E) dE, \quad (5)$$

$$g_{t1}(E) = (N_{t1}/\sigma\sqrt{2\pi}) \exp[-(E - E_{t1})^2/2\sigma^2], \quad (6)$$

где  $N_{t1} = (dN_{t1}/d\Phi)\Phi$  — полная емкость зоны радиационных дефектов с концентрациями дырок

$$p_{t1}(0) = (N_{t1}/2) - n_0$$

или

$$p_{t1}(0) = (N_{t1}/2) + p_0$$

для образцов  $n$ - и  $p$ -типа соответственно;  $E_F$  — уровень Ферми, рассчитанный в рамках шестизонной модели Диммока [7], с параметрами, приведенными в [8],  $\sigma$  — ширина зоны  $E_{t1}$ .

Оптимизация параметров резонансной зоны  $dN_{t1}/d\Phi$  и  $\sigma$  проводилась с помощью ЭВМ. Для оценки точности определения скорости генерации радиационных дефектов  $dN_{t1}/d\Phi$  и ширины резонансной зоны  $\sigma$  проведена вариация величин  $N_{t1}$  и  $\sigma$  для каждого образца (штриховые линии на рис. 5). Наилучшее согласие экспериментальных и теоретических результатов достигнуто при следующих значениях параметров модели:

$$dN_{t1}/d\Phi = (0.45 \pm 0.1) \cdot 10^{17} \text{ см}^{-1}, \quad \sigma = (15 \pm 5) \text{ мэВ}.$$

Таким образом, параметры зоны радиационных дефектов  $E_{t1}$  оказались вполне сопоставимыми с аналогичными параметрами зоны  $E_t$ , полученными в работе [2].

Однако точность определения параметров модели гораздо ниже. Это обстоятельство, в частности, не позволяет оценить характер изменения скорости генерации радиационных дефектов  $dN_{r1}/d\Phi$  с ростом потока облучения и степень отклонения функции плотности состояний в зоне  $E_{r1}$  от гауссовской формы.

## 5. Заключение

Полученные в настоящей работе экспериментальные результаты указывают на то, что в облученных электронами сплавах  $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x \leq 0.03$ ) в окрестности перехода диэлектрик–металл, индуцированного давлением, необходимо учитывать существование 3 механизмов проводимости: поверхностной проводимости электронного типа, зонной дырочной проводимости и дырочной проводимости по зоне радиационных дефектов  $E_{r1}$ . Полевые зависимости коэффициента Холла, рассчитанные в рамках двухзонной модели, удовлетворительно согласуются с экспериментальными данными во всем исследованном диапазоне давлений и магнитных полей и позволяют определять параметры носителей заряда в облученных образцах. В таких сплавах переход диэлектрик–металл под действием давления сопровождается перетеканием электронов из валентной зоны в зону  $E_{r1}$  и увеличением концентрации свободных дырок. Экспериментальные зависимости концентрации дырок от давления удовлетворительно согласуются с теоретическими, полученными в рамках предложенной ранее модели перестройки энергетического спектра электронами сплавов под давлением. Анализ этих зависимостей свидетельствует о значительной ( $\approx 10$  мэВ) ширине зоны радиационных дефектов  $E_{r1}$  и позволяет оценить ее основные параметры.

Авторы благодарны А.М. Мусалитину за облучение исследованных образцов быстрыми электронами.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 96-02-18325, 96-02-16275, 96-15-96500).

## Список литературы

- [1] Н.Б. Брандт, В.Н. Доропей, В.П. Дубков, Е.П. Скипетров. ФТП, **22**, 1462 (1988).
- [2] Н.Б. Брандт, Е.П. Скипетров. ФНТ, **22**, 870 (1996).
- [3] N.B. Brandt, V.B. Kovalev, E.P. Skipetrov. *Proc. 4th Int. Conf. High Pressure in Semicond. Phys.* (Thessaloniki, Greece, 1990) p. 170.
- [4] N.B. Brandt, V.B. Kovalev, E.P. Skipetrov. *Semicond. Sol. Technol.*, **6**, 487 (1991).
- [5] П.С. Киреев. *Физика полупроводников* (М., Высш. шк., 1975) гл. 4, с. 274.
- [6] Е.П. Скипетров, В.П. Дубков, А.М. Мусалитин, И.Н. Подскакалов. ФТП, **22**, 1785 (1988).

- [7] J.O. Dimmock. *The Physics of Semimetals and Narrow Gap Semiconductors*, ed. by D.L. Carter and R.T. Bate (N.Y., Pergamon Press, 1971) p. 319.
- [8] Н.Б. Брандт, Я.Г. Пономарев, Е.П. Скипетров. ФТП, **29**, 3233 (1987).

Редактор Т.А. Полянская

## Pressure induced insulator-metal transition in $Pb_{1-x}Sn_xSe$ ( $x \leq 0.03$ ) alloys irradiated with electrons

E.P. Skipetrov, E.A. Zvereva, V.B. Kovalev, L.A. Skipetrova

M.V. Lomonosov Moscow State University, 119899 Moscow, Russia

**Abstract** Galvanomagnetic effects ( $B \leq 7$  T) in electron-irradiated ( $T \approx 300$  K,  $E = 6$  MeV,  $\Phi \leq 5.7 \cdot 10^{17}$  cm $^{-2}$ ) *n*- and *p*- $Pb_{1-x}Sn_xSe$  ( $x \leq 0.03$ ) alloys have been investigated in the vicinity of the insulator-metal transition induced by pressure ( $P \leq 18$  kbar). The dependences of Hall coefficient on the magnetic field were calculated in the frame of the two-band model and showed good agreement with the experimental data. Main parameters of charge carriers in irradiated alloys were determined. It has been shown that the hole concentration increases under pressure in the metal phase, that was associated with the motion of the energy bands at the *L*-point of Brillouin zone and flow of electrons from the valence band to the resonant state band  $E_{r1}$ , induced by the electron irradiation. The parameters of the radiation defect band  $E_{r1}$  have been determined.

Fax: (095) 9328876 (Skipetrov)

E-mail: skip@mig.phys.msu.su (Skipetrov)