

Особенности транспортных свойств соединения $\text{Lu}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$

© М.Н. Япрынцева, Р.А. Любушкин, О.Н. Соклакова, О.Н. Иванов

Белгородский государственный национальный исследовательский университет,
308015 Белгород, Россия

E-mail: yaprintsev@bsu.edu.ru

(Получена 31 января 2017 г. Принята к печати 15 февраля 2017 г.)

Исследованы температурные, электрополевые и магнитополевые зависимости удельного электрического сопротивления соединения $\text{R}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$. В низкотемпературной области в данном соединении реализуется прыжковый механизм проводимости с переменной длиной прыжка. В температурной области прыжковой проводимости электрическое сопротивление уменьшается при возрастании напряженности электрического поля в образце, что характерно для процессов туннелирования носителей заряда из одного локализованного состояния в примесной зоне в другое состояние. При исследовании поперечного магнитосопротивления обнаружен кроссовер от параболической зависимости магнитосопротивления в слабых полях к линейной зависимости в сильных полях. Установленные особенности транспортных свойств соединения $\text{R}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$ характерны для неоднородных и неупорядоченных полупроводников.

DOI: 10.21883/FTP.2017.08.44780.49

В настоящее время теллурид висмута Bi_2Te_3 является основным низкотемпературным термоэлектрическим материалом [1]. Его существенным недостатком является низкая термоэлектрическая эффективность, что стимулирует многочисленные поисковые работы, направленные на повышение термоэлектрической добротности ZT , одно из перспективных направлений которых связано с легированием Bi_2Te_3 , в том числе, редкоземельными элементами [2–6]. Так, согласно предварительным результатам, легирование Bi_2Te_3 лютецием позволяет увеличить термоэлектрическую добротность до ~ 1.5 (в чистом теллуриде висмута $ZT \sim 1$).

В качестве одной из возможных причин повышения термоэлектрической добротности Bi_2Te_3 при легировании редкоземельными элементами рассматривается неоднородное распределение легирующих атомов в объеме материала, приводящее в силу формирования неоднородной структуры к уменьшению теплопроводности. Электрически неоднородные полупроводниковые материалы характеризуются появлением уникальных особенностей транспортных свойств, связанных с реализацией специфических механизмов электропроводности как при изменении температуры, так и при приложении внешнего магнитного поля.

Целью настоящей работы является обнаружение и анализ особенностей транспортных свойств соединений $\text{R}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$ ($\text{R} = \text{Tm}, \text{Lu}, \text{Er}, \text{Yb}$), характерных для неупорядоченных и неоднородных полупроводников. Среди таких свойств были изучены температурные зависимости удельного электрического сопротивления, вольт-амперные характеристики, поперечное магнитосопротивление.

Синтез исходного порошка исследуемых соединений проводили сольвотермально-микроволновым методом. Синтезированный порошок далее компактировали с помощью метода холодного изостатического прессования с последующим отжигом в потоке аргона при 683 К в течение 2 ч.

Рентгенофазовый анализ, выполненный с помощью рентгеновского дифрактометра SmartLab RIGAKU ($\text{CuK}\alpha$ -излучение, Ni фильтр), показал, что полученные материалы являются однофазными и имеют гексагональную структуру с пространственной группой симметрии $R\bar{3}m$, характерной для чистого Bi_2Te_3 ; параметры элементарной ячейки составляли $a = b = 4.385$, $c = 30.49$ Å и практически не зависели от типа легирующего элемента.

Удельное электрическое сопротивление ρ , вольт-амперные характеристики и поперечное магнитосопротивление образцов измеряли с помощью метода „вольтметра-амперметра“ на установке Cryogen free.

Обнаруженные и исследованные особенности, представленные ниже, были характерны для всех легированных редкоземельными элементами соединений $\text{R}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$ и не зависели существенно от используемого легирующего элемента. Поэтому ниже дан подробный анализ особенностей транспортных свойств на примере соединения $\text{Lu}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$.

На рис. 1 представлена температурная зависимость ρ , снятая в режиме нагрева в интервале 2–25 К. Видно, что на зависимости $\rho(T)$ при температуре $T_m \approx 11$ К наблюдается минимум, свидетельствующий о смене механизма проводимости от „металлического“ (выше T_m) до „полупроводникового“ (ниже T_m). Выше температуры T_m экспериментальная зависимость $\rho(T)$ укладывается на прямую линию в координатах $\rho - T^{3/2}$. Такая зависимость объясняется в рамках механизма рассеяния носителей заряда на акустических фононах [7]. Согласно данным работы [6], атомы лютеция в теллуриде висмута ведут себя как доноры, т.е. основными носителями заряда являются электроны.

Ниже температуры T_m наилучшее согласие с экспериментом дает использование механизма прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка, характерного именно для неоднородных и неупорядоченных полупроводников [8]. В рамках такого механизма температурная

зависимость сопротивления определяется выражением

$$\rho(T) = AT^{1/4} \exp \left[\left(\frac{T_0}{T} \right)^{1/4} \right], \quad (1)$$

где A и T_0 — константы.

На вставке рис. 1 показано, что ниже T_m экспериментальная зависимость $\rho(T)$ является линейной в координатах $\ln(\rho/T^{1/4}) - T^{-1/4}$.

Механизм прыжковой проводимости рассматривает прыжки носителей заряда между локализованными состояниями в примесной зоне посредством туннелирования. Процессы туннелирования носителей заряда существенно зависят от их энергии, увеличивать которую можно, увеличивая плотность электрического тока, текущего через образец в процессе измерения ρ (или увеличивая разность потенциалов, приложенную к образцу). Поэтому для процессов туннелирования характерны нелинейные вольт-амперные характеристики, свидетельствующие об уменьшении электрического сопротивления (или увеличении плотности тока) при возрастании напряженности электрического поля E в образце.

Для исследуемого образца $\text{Lu}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$ в температурной области прыжковой проводимости были получены вольт-амперные характеристики, которые затем были использованы для построения и анализа зависимостей $\rho(E)$. Возрастание напряженности электрического поля приводит к значительному уменьшению ρ , причем эта тенденция значительно усиливается при уменьшении температуры ниже T_m ; при нагревании же образца выше 27 К электрическое сопротивление от поля уже практически не зависит. Это поведение согласуется с механизмом туннелирования носителей заряда в процессе прыжковой проводимости.

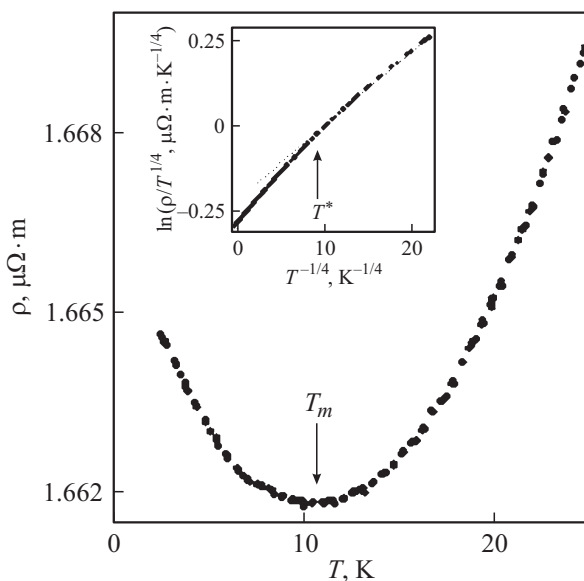


Рис. 1. Температурная зависимость удельного электрического сопротивления соединения $\text{R}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$. На вставке — зависимость $\ln(\rho/T^{1/4}) = f(T^{-1/4})$.

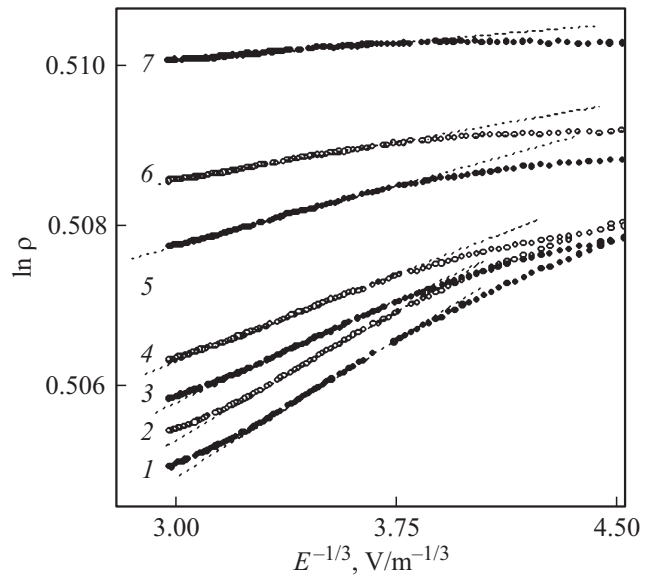


Рис. 2. Электрополевые зависимости удельного электрического сопротивления соединения $\text{R}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$ при температурах 2 (кривая 1), 4 (2), 8 (3), 10 (4), 13 (5), 19 (6) и 23 К (7).

Известно, что в области прыжковой проводимости зависимость $\rho(E)$ отличается для слабых полей (при выполнении условия $e\epsilon_r E r \ll kT$, где ϵ_r — относительная диэлектрическая проницаемость материала и r — средняя длина прыжка носителя заряда) и сильных полей (когда $e\epsilon_r E r \gg kT$) [9]. Важно, что в сильных электрических полях удельное сопротивление при возрастании электрического поля уменьшается по закону $\rho(E) \sim \exp(E^{-1/3})$. На рис. 2 показано, что на зависимостях $\rho(E)$, представленных в координатах $\ln \rho - E^{-1/3}$, в определенных интервалах полей, зависящих от температуры, наблюдаются линейные участки, подтверждающие реализацию прыжкового механизма проводимости в образце $\text{Lu}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$.

Еще одно доказательство формирования неоднородной и неупорядоченной структуры в исследуемом материале дают результаты исследования поперечного магнитосопротивления (при измерении поперечного магнитосопротивления вектор индукции магнитного поля B направлен перпендикулярно току через образец). Магнитосопротивление определяли в соответствии с выражением

$$MR = \frac{\Delta\rho(B)}{\rho(0)} = \frac{\rho(B) - \rho(0)}{\rho(0)} \cdot 100. \quad (2)$$

На рис. 3 приведены зависимости $MR(B)$ для соединения $\text{Lu}_{0.1}\text{Bi}_{1.9}\text{Te}_3$, полученные при различных температурах. Для всех температур сопротивление увеличивается в магнитном поле, т.е. магнитосопротивление положительно. Для температуры выше ~ 220 К зависимость $MR(B)$ подчиняется параболическому закону $MR \sim B^2$, как это показано на вставке рис. 3. Такое поведение является типичным для большинства металлов и полу-

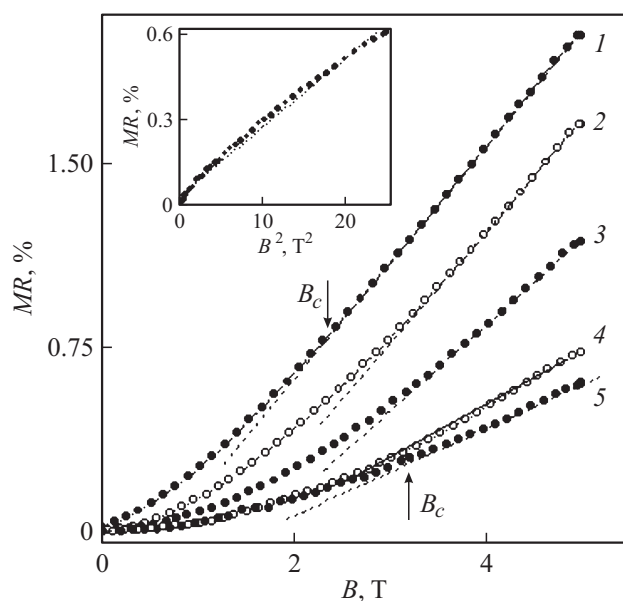


Рис. 3. Магнитопольевые зависимости удельного электрического сопротивления соединения $R_{0.1}Bi_{1.9}Te_3$ при температурах 2 (кривая 1), 60 (2), 130 (3), 160 (4) и 240 К (5). На вставке — зависимость $MR(B^2)$ при 240 К.

проводников [10] и обусловлено действием на движущиеся носители заряда силы Лоренца, приводящей к изменению их длины свободного пробега. Кроссовер от параболической зависимости в слабых полях к линейной зависимости в сильных полях наблюдался при постепенном уменьшении температуры. Поле кроссовера B_c уменьшалось при понижении температуры, т.е. линейный вклад в общую зависимость $MR(B)$ постепенно возрастал.

Линейное положительное магнитосопротивление в металлах и полупроводниках может быть обусловлено несколькими механизмами [10–13]. Один из механизмов развит для структурно неоднородных и неупорядоченных полупроводников [12,13]. В таких полупроводниках структурная неоднородность приводит к развитию электрической неоднородности. В этом случае сильное магнитное поле заставляет часть электрического тока течь в направлении, перпендикулярном приложенному электрическому напряжению, что приведет к появлению Холловского вклада (линейного по магнитному полю) в полное магнитосопротивление.

Таким образом, соединение $Lu_{0.1}Bi_{1.9}Te_3$ демонстрирует следующие особенности транспортных свойств, характерные для неоднородных и неупорядоченных полупроводников: прыжковый механизм проводимости с переменной длиной прыжка в низкотемпературной области и линейное положительное магнитосопротивление.

При выполнении исследований была использована приборная база Центра коллективного пользования научным оборудованием „Диагностика структуры и свойств наноматериалов“ Белгородского государственного национального исследовательского университета.

Список литературы

- [1] Б.М. Гольцман, В.А. Кудинов, И.А. Смирнов. *Полупроводниковые термоэлектрические материалы на основе Bi_2Te_3* (М., Наука, 1972).
- [2] F. Wu, H.Z. Song, F. Gao, W.Y. Shi, J.J. Fia, X. Hu. *J. Electron. Mater.*, **42**, 1140 (2013).
- [3] X.H. Ji, X.B. Zhao, Y.H. Zhang, B.H. Lu, H.L. Ni. *Alloys Comp.*, **387**, 282 (2005).
- [4] F. Wu, H.Z. Song, J.F. Jia, F. Gao, Y.J. Zhang, X. Hu. *Phys. Status Solidi A*, **210**, 1183 (2013).
- [5] W.Y. Shi, F. Wu, K.L. Wang, J.J. Yang, H.Z. Song, X.J. Hu. *Electron. Mater.*, **43**, 3162 (2014).
- [6] J. Yang, F. Wu, Z. Zhu, L. Yao, H. Song, X. Hu. *J. Alloys Comp.*, **619**, 401 (2015).
- [7] H. Yamada, T. Fukushima, T. Yoshimura, N. Fujimura. *J. Kor. Phys. Soc.*, **58**, 792 (2011).
- [8] R. Laiho, A.V. Lashkul, K.G. Lisunov, E. Lahderanta, M.A. Shakhov, V.S. Zakhvalinskii. *J. Phys.: Condens. Matter*, **20**, 295204 (2008).
- [9] G.K. Van Ancum, M.A.J. Verhoeven, D.H.A. Blank, H. Rogalla. *Phys. Rev. B*, **52**, 5598 (1995).
- [10] K. Liu, C.L. Chien, P.C. Searson. *Phys. Rev. B*, **58**, R14681 (1998).
- [11] J. Ping, I. Yudhistira, N. Ramakrishnan, S. Cho, S. Adam, M.S. Fuhrer. *PRL*, **113**, 047206 (2014).
- [12] M.M. Parish, P.B. Littlewood. *Phys. Rev. B*, **72**, 094417 (2005).
- [13] J. Hu, M.M. Parish, T.F. Rosenbaum. *Phys. Rev. B*, **75**, 214203 (2007).

Редактор Г.А. Оганесян

Peculiarities of transport properties of the $Lu_{0.1}Bi_{1.9}Te_3$

M.N. Yayprintsev, R.A. Lyubushkin, O.N. Soklakova, O.N. Ivanov

Belgorod State University,
308015 Belgorod, Russia

Abstract The temperature, electric field and magnetic field dependences have been studied for the $R_{0.1}Bi_{1.9}Te_3$ compound. It is shown that the variable-range hopping conductivity takes place in this compound at low temperatures. Within the temperature range of the hopping conductivity, the electrical resistivity decreases as electric field strength in the sample increases. This behavior is characteristic for process of electron tunneling from one localized state in impurity band to another one. The crossover from parabolic magnetic field dependence at weak fields to linear dependence at high fields was found by transverse magnetoresistivity examination. The peculiarities of the transport properties of $R_{0.1}Bi_{1.9}Te_3$ are characteristic for inhomogeneous and disordered semiconductors.