Физика низких температур, 1995, т. 21, № 4, с. 451–455 УДК 537.31

Аномальный размерный эффект в проводимости пленок висмута малой толщины

А. С. Анопченко, В. Ю. Каширин, Ю. Ф. Комник

Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины, Украина, 310164, г. Харьков, пр. Ленина, 47

Статья поступила в редакцию 19 апреля 1994 г., после переработки 25 ноября 1994 г.

Исследованы кинетические свойства (проводимость, магнитосопротивление и коэффициент Холла) пленок висмута в интервале толщин 100–500 Å при гелиевой температуре. Пленки висмута малой толщины проявляют аномальный размерный эффект — рост проводимости с уменьшением толщины, а также четко выраженные эффекты квантовой интерференции — слабой локализации электронов и усиления электрон-электронного взаимодействия в неупорядоченной системе. Полученные данные о кинетических свойствах пленок использованы для определения характера изменения концентрации и подвижности электронов и дырок с уменьшением толщины. Изотропность свойств в плоскости пленки вследствие существования аксиальной текстуры позволила при этом использовать уравнения для проводника с двумя типами носителей заряда. При расчете в кинетических характеристиках учтен вклад квантовых поправок, связанных с квантовой интерференцией. Установлено, что концентрация носителей заряда заметно увеличивается (до двух порядков) при уменьшении толщины пленки до 100 Å, что определяет проявление аномального размерного эффекта в проводимости пленок.

Досліджено кінетичні властивості (провідність, магнітоопір та коефіцієнт Холла) плівок вісмуту в інтервалі товщин 100–500 Å при гелійових температурах. Плівки вісмуту малої товщини виявляють аномальний розмірний ефект — зростання провідності із зменшенням товщини, а також чітко виражені ефекти квантової інтерференції — слабкої локалізації електронів та посилення електрон–електронної взаємодії в невпорядкованій системі. Одержані дані про кінетичні властивості плівок використано для визначення характера змінення концентрації та рухомості електронів і дірок з зменшенням товщини. Ізотропність властивостей в площині плівки внаслідок існування аксіальної текстури дозволила при цьому використати рівняння для провідника з двома типами носіїв заряду. При розрахунку в кінетичних характеристиках враховано вклад квантових поправок, які пов'язані з квантовою інтерференцією. Встановлено, що концентрація носіїв заряду помітно збільшується (до двох порядків) при зменшенні товщини плівки до 100 Å, що визначає прояв аномального розмірного ефекту в провідності плівок.

1. В работе [1] был обнаружен аномальный размерный эффект в низкотемпературной проводимости чистых эпитаксиальных пленок висмута: при уменьшении толщины пленки L (при значениях $L < 2\,500$ Å) проводимость пленок заметно возрастает. Этот эффект в работах [2,3] был объяснен увеличением концентрации носителей заряда при уменьшении L по сравнению со значением в массивном кристалле ($3 \cdot 10^{17}$ см$^{-3}$). Это возрастание сопровождается, естественно, изменением таких характеристик, как энергия Ферми ε_F, значения фермиевского импульса p_F, де-бройлевской длины волны λ_D и т. п.

Изменение электронных характеристик пленок висмута при уменьшении L было отмечено не только при исследовании кинетических свойств, но и при изучении туннельного эффекта [4,5] и оптических свойств [6,7]. При этом часто (см., например, [6,7]) эти изменения связывают с влиянием квантового размерного эффекта (КРЭ), проявляющегося в структурно совершенных пленках висмута [1,8]. Однако теория КРЭ, построенная для пленок как изотропного полуметалла [9], так и с учетом особенностей зонной структуры висмута [10,11], предсказывает наряду увеличением амплитуды квантово-размерных осцилляций кинетических свойств и повышением ε_F при уменьшении L заметное убывание концентрации носителей заряда при приближении к ультраквантовому пределу ($L \simeq \lambda_D$).

Результаты работ [2,3] показывают, что параметры энергетического спектра в пленках висмута с уменьшением толщины заметно изменяются не только под влиянием КРЭ, но и некоторой иной причины, что создает ситуацию, далекую от предсказанной в теории КРЭ для параметров спектра, присущих массивному висмуту. В [2,3] на основании измеренных значений проводимости σ, коэффициента магнитосопротивления $\Delta\rho/(\rho H^2)$ и коэффициента Холла R_H рассчитаны значения концентрации электронов n и дырок p и соответствующих подвижностей $\mu = e\tau_e/m_e$, $\nu = e\tau_h/m_h$ (τ_i и m_i — характерные времена релаксации и эф-

© А. С. Анопченко, В. Ю. Каширин, Ю. Ф. Комник, 1995

фективные массы электронов и дырок). Поскольку в плоскости пленки кинетические свойства изотропны благодаря аксиальной текстуре (ось C_3 в кристаллитах совпадает с нормалью к плоскости пленки, а азимутальная ориентация кристаллитов произвольная), для расчета были использованы соотношения, известные для проводника с двумя типами носителей:

$$\sigma = \rho^{-1} = e\,(n\,\mu + p\,\nu)\ , \qquad (1)$$

$$\frac{\Delta\rho}{\rho H^2} = \frac{n\,p\,\mu\,\nu(\mu+\nu)^2}{(n\,\mu + p\,\nu)^2}\ , \qquad (2)$$

$$R_H = \frac{1}{e}\,\frac{p\,\nu^2 - n\,\mu^2}{(p\,\nu + n\,\mu)^2}\ . \qquad (3)$$

Оказалось, что концентрация носителей заряда в пленках висмута растет с уменьшением L; при 4,2 К в области толщин 450–2 500 Å это изменение может быть описано эмпирической зависимостью

$$n = n_0\left(1 + L_0/L\right)\ , \qquad (4)$$

$n_0 = 3\cdot 10^{17}$ см$^{-3}$, $L_0 \approx 1\,000$ Å.

Появление такой зависимости $n(L)$ может быть объяснено влиянием неоднородного распределения потенциала в пленке [3,12]. Идея этого объяснения состоит в следующем. Изгиб потенциала вблизи поверхностей пленки приводит к увеличению эффективного перекрытия зон в полуметалле и повышению уровня химического потенциала относительно дна зоны проводимости, а поскольку плотность состояний является возрастающей функцией энергии, это сопровождается ростом концентрации в пленке как электронов, так и дырок. Согласно [12], приповерхностное искривление потенциала приводит к пространственному перераспределению носителей разного знака по толщине пленки полуметалла при сохранении равенства их средней концентрации. Условие $n = p$ использовалось в [3] в качестве четвертого уравнения, дополняющего (1)–(3).*

В работах [2,3] расчеты концентрации и подвижности носителей заряда в пленках висмута не были распространены на область толщин менее 450 Å, поскольку в этих работах были обнаружены аномалии в температурном изменении сопротивления (см. рис. 9 в [2]) и поведении магнитосопротивления (рис. 2 в [3]) пленок висмута малой толщины. В дальнейшем стало понятно, что эти аномалии представляют собой проявление квантовых интерференционных эффектов — слабой локализации (СЛ) электронов и усиления электрон-электронного взаимодействия в неупорядоченной двумерной электронной системе [14–16]. Интерференционные эффекты определяют появление квантовых поправок к проводимости, приводящих к необычным температурной и магнитополевой зависимостям проводимости [17]. В работах [2,3], по-существу, впервые наблюдались эти эффекты.

Таким образом, для получения сведений об изменении концентрации и подвижности носителей заряда в пленках висмута малой толщины необходимо корректно учесть существование квантовых поправок к проводимости. В ином случае неизбежны погрешности и ошибочные заключения. В частности, подобная причина делает не вполне надежным вывод работы [18] о переходе полуметалл—полупроводник в пленках висмута при $L \simeq 180$ Å под влиянием КРЭ. В действительности пленки висмута обнаруживают металлические свойства вплоть до перколяционной толщины (40–50 Å).

2. В настоящей работе на основании полученных экспериментальных данных для кинетических свойств пленок висмута в интервале толщин 100–500 Å (проводимости, ее изменения в магнитном поле и коэффициента Холла) установлен характер изменения концентрации и подвижности носителей заряда с толщиной пленки. Искомые характеристики предполагались усредненными по толщине пленки. Основное внимание уделено корректному выделению вклада квантовых поправок в магнитосопротивление на основании опыта, приобретенного при изучении квантовых интерференционных эффектов и эффекта электронного перегрева в пленках висмута [19–22].

Пленки висмута приготавливались конденсацией молекулярного пучка в вакууме 10^{-6} торр на свежий скол слюды или кальцита при комнатной температуре. По данным структурного исследования такие пленки толщиной $\simeq 100$ Å являются однородными и сплошными; в них наблюдается аксиальная текстура с направлением оси C_3 по нормали к пленке. Электрические измерения выполнены при гелиевой температуре. Определение коэффициента магнитосопротивления $\Delta\rho/(\rho H^2)$ осуществлялось путем выделения из магнитосопротивления квантовой поправки, связанной с эффектом СЛ, и нахождения квадратичной по H составляющей.

* Авторы работы [13] использовали в качестве четвертого уравнения для нахождения n, p, μ, ν выражение для термоэдс полуметалла, которое они измерили для пленок висмута толщиной 200–3 000 Å при 80–293 К, наряду с ρ, $\Delta\rho/(\rho H^2)$ и R_H. Однако анализ показывает, что корректные расчеты искомых величин на основании данных по термоэдс осуществить затруднительно. Тем не менее и в этой работе выявлен сильный рост n и p с уменьшением L, особенно при $L < 1\,000$ Å. При этом оказалось, что раскомпенсированность, выявленная при больших толщинах, заметно убывает в области малых толщин, а значения μ и ν становятся практически равными при $L \le 400$ Å.

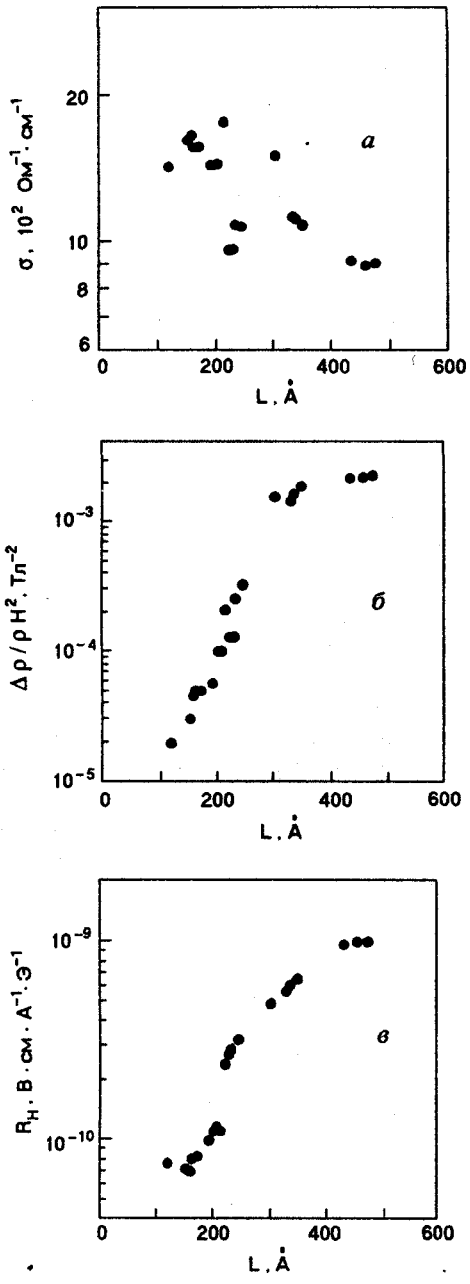

Рис. 1. Изменение с толщиной пленок висмута проводимости σ (*а*), коэффициента магнитосопротивления $\Delta\rho/\rho H^2$ (*б*) и коэффициента Холла R_H (*в*).

На рис. 1 представлены в полулогарифмических координатах полученные зависимости σ, $\Delta\rho/(\rho H^2)$ и R_H от толщины пленки. Видно, что с уменьшением L весьма сильно убывает коэффициент магнитосопротивления, что связано с падением подвижности, а также уменьшается коэффициент Холла, что свидетельствует о том, что не возникает заметной раскомпенсированности носителей заряда; но в то же время проводимость возрастает, демонстрируя аномальный размерный эффект [3].

Изучаемые пленки, как и объекты исследования в [19–22], обладают длиной свободного пробега носителей заряда l порядка (или менее) толщины пленки. Это, по-видимому, является причиной невыраженности размерного квантования*, т. е. в энергетическом спектре подзоны размерного квантования сильно размыты. Кроме того, как будет видно из дальнейшего, с уменьшением толщины пленки вследствие роста концентрации носителей заряда параметры спектра изменяются (p_F растет, а λ_D соответственно уменьшается) так, что во всей области толщин выполнено условие $L > \lambda_D$. Изучаемые пленки демонстрируют «металлическое» поведение проводимости, а параметр $k_F l$, характеризующий степень разупорядочения, больше единицы (по оценкам $k_F l \approx 10$–20). Подобные замечания позволяют нам воспользоваться классическими уравнениями типа (1)–(3), выражающими ρ, $\Delta\rho/\rho$ и R_H через искомые характеристики.

Будем исходить из предположения [3,12] том, что изменение концентрации носителей с уменьшением толщины пленок висмута не сопровождается появлением раскомпенсации ($n \approx p$). Введем обозначения: $\overline{\mu} \equiv (\Delta\rho/(\rho H^2))^{1/2}$ — средняя для двух типов носителей подвижность, $\mu_H \equiv \rho^{-1} R_H$ — подвижность, связанная с холловским дрейфом. Непосредственно из экспериментальных данных для магнитосопротивления можно найти $\overline{\mu}$ и получить представление о зависимости $\overline{\mu}$ от толщины пленки, а далее, считая, что $\sigma = \rho^{-1} = eN\overline{\mu}$, (где $N = n + p$) найти изменение с толщиной пленки средней концентрации $\overline{n} = N/2$, а из коэффициента Холла — изменение с L холловской подвижности μ_H. Результаты таких расчетов представлены на рис. 2.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что уже в таком упрощенном варианте расчета четко выявляется рост концентрации носителей с уменьшением толщины пленки (рис. 2,*а*), причем даже несколько более сильный, чем установлено в [2] для интервала толщин 450–2 000 Å. При толщине $\simeq 100$ Å концентрация носителей в пленках висмута достигает $\simeq 10^{20}$ см$^{-3}$.

Использование всей системы уравнений (1)–(3) не вносит каких-либо принципиальных изменений

* Заметим, что размерное квантование, реализуемое в условиях соизмеримости λ_D и L и достаточно большой длине свободного пробега электронов l, и квантовая интерференция, возникающая в условиях диффузионного движения носителей заряда, не являются, по-видимому, взаимоисключающими эффектами и могут проявляться одновременно [23].

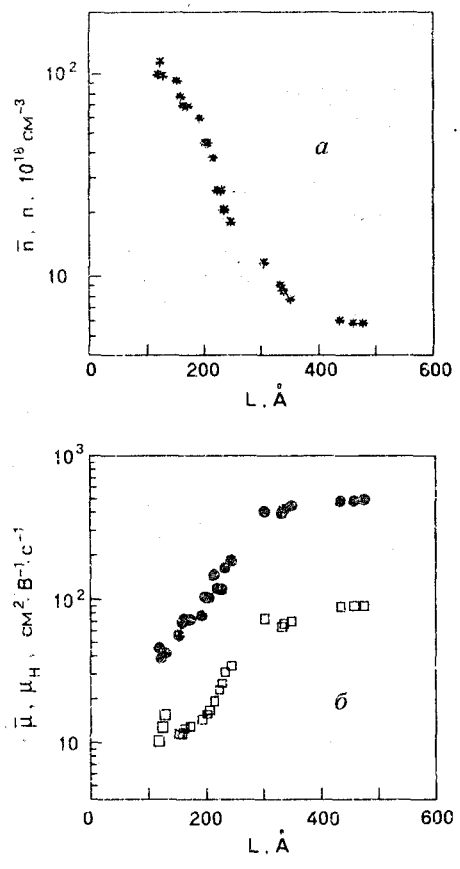

Рис. 2. Изменение с толщиной пленок висмута концентрации носителей заряда (*а*) и их подвижности (*б*). Приведены рассчитанные средние значения $\bar{n}$(×) и полученные из системы уравнений (1)–(3) значения n (+) при $n = p$ (* — результат наложения × и +, демонстрирующий совпадение результатов двух вариантов расчета), средние значения $\bar{\mu}$ (●) и значения холловской подвижности μ_H (□).

в полученный результат. Решение (1)–(3) при $n = p$ имеет вид

$$n = \frac{1}{e\rho\sqrt{(2\bar{\mu})^2 + \mu_H^2}} = \frac{1}{e\rho\tilde{\mu}}, \qquad (5)$$

$$\mu = \frac{1}{2}\sqrt{(2\bar{\mu})^2 + \mu_H^2} - \frac{\mu_H}{2} = \frac{1}{2}(\tilde{\mu} - \mu_H), \qquad (6)$$

$$\nu = \frac{1}{2}\sqrt{(2\bar{\mu})^2 + \mu_H^2} + \frac{\mu_H}{2} = \frac{1}{2}(\tilde{\mu} + \mu_H), \qquad (7)$$

$$\tilde{\mu} = \sqrt{(2\bar{\mu})^2 + \mu_H^2}.$$

Вследствие того, что $\mu_H \ll \bar{\mu}$ (см. рис. 2,*б*), полученные значения n (рис. 2,*а*) практически не отличаются от найденных выше. Полученные из (6), (7) значения подвижностей μ и ν лежат вблизи их среднего значения на рис. 2,*б*, причем $\mu < \nu$, а отличие их по указанной выше причине оказалось небольшим ($\nu/\mu = 1{,}2$–$1{,}4$). В пленках висмута в связи с существованием аксиальной текстуры найденные значения подвижности электронов соответствуют некоторой усредненной в плоскости C_1C_2 подвижности.

Для сравнения нами реализован второй возможный вариант расчета по формулам для двухзонной модели (1)–(3) в предположении близости значений подвижности ($\mu \approx \nu$). При этом не предполагается существование скомпенсированности носителей разного знака в пленках. В этом варианте расчета проявляется различие концентраций электронов и дырок ($p/n = 1{,}4$–$2{,}0$), но среднее их значение изменяется с толщиной пленки, как на рис. 2,*а*, демонстрируя сильный рост концентрации носителей заряда с уменьшением L.

Надо отметить, что заметный рост концентрации носителей заряда в пленках висмута малой толщины радикально изменяет условия проявления квантового размерного эффекта. Теория КРЭ предсказывает появление осцилляций кинетических свойств при изменении толщины пленок с периодом, определяемым значением экстремальной хорды P_z поверхности Ферми в направлении квантования. В [2] наблюдались осцилляции сопротивления эпитаксиальных пленок висмута в интервале толщин 1 500–3 500 Å с примерно постоянным периодом $\Delta L \approx 260$ Å, что согласуется с значением P_z для электронного эллипсоида в массивном висмуте. В связи с ростом концентрации носителей заряда при толщине пленки $\simeq 100$ Å период должен уменьшиться почти в семь раз и составлять $\simeq 40$ Å. При такой или даже меньшей толщине должен иметь место переход полуметалл—полупроводник, но он не может быть реализован, поскольку эта толщина соответствует перколяционной области для пленок висмута, полученных при комнатной температуре.

3. Полученная информация представляет ценность для интерпретации результатов изучения различных кинетических и оптических свойств пленок висмута и, в частности, результатов исследования квантовых интерференционных эффектов и эффекта электронного перегрева [20–22]. В этих работах учитывалось изменение параметров спектра пленок висмута вследствие изменения концентрации носителей заряда, но при этом использовалось эмпирическое выражение (4). Новые данные вносят коррективы в соответствующие оценки и расчеты. Так например, в работе [22] для пленки толщиной 92 Å получены данные для температурного изменения времени τ_{eph} электрон-фононной энергетической релаксации в интервале температур 0,6–2 К, где проявилась зависимость $\tau_{eph}^{-1} =$, $= A_4T^4$ отвечающая так называемому «грязному пределу» ($q_{ph}l < 1$, q_{ph} — волновой вектор теплового фонона). В работах [20–22] получены также данные для температурной зависимости τ_{eph} для пленок висмута толщиной порядка 100 Å при реа-

лизации «чистого предела» ($q_{ph}l > 1$), в котором имеет место зависимость $\tau_{eph}^{-1} = A_3 T^3$. Для сравнения экспериментальных значений τ_{eph} с теорией в работе [22] соответствующие соотношения из [24,25] были преобразованы таким образом, чтобы в них вместо таких электронных характеристик, как ε_F, p_F, $\widetilde{N}$ ($\widetilde{N}$ — плотность состояний), входила лишь концентрация носителей заряда n. Оказалось, что в «чистом пределе» $\tau_{eph}^{-1} \propto nT^3$, а в «грязном пределе» $\tau_{eph}^{-1} \propto n^{1/3}T^4$. При использовании зависимости (4) в«грязном пределе» для образца толщиной 92 Å [28] рассчитанные значения τ_{eph}^{-1} оказались в 2,3 раза меньше экспериментальных*. Если учесть скорректированные, согласно настоящей работе, значения n, то получаем экспериментальное значение $A_4^{exp} = 2{,}25 \cdot 10^8\ K^{-4} \cdot c^{-1}$, а теоретическое $A_4^{theor} = 1{,}72 \cdot 10^8\ K^{-4} \cdot c^{-1}$, т. е. согласие оказывается лучшим, чем приведено в работе [22]. Для «чистого предела» расхождение между экспериментальными и рассчитанными значениями τ_{eph} оказалось в [22] весьма значительным (отличие в 50–60 раз). Учет результатов данной работы и в этом случае заметно уменьшает это расхождение: коэффициенты A_3^{exp} и A_3^{theor} отличаются всего лишь в несколько раз. Следует заметить, что значения коэффициента диффузии носителей заряда D, рассчитанные из выражения $D = v_F^2 \tau/3$ (где τ — время упругого рассеяния носителей, определяющее проводимость пленки) и приведенные в работах [20–22], практически не изменяются после уточнения n, так как при этом v_F возрастает, а τ убывает в соответствии с ростом концентрации.

4. Аномальный размерный эффект в пленках висмута малой толщины, выявленный в настоящей работе, превосходит по масштабам изменения концентрации носителей заряда те допущения, которые были сформулированы в модели, учитывающей влияние приповерхностного изгиба потенциала [12], в связи с чем требует новых теоретических подходов для своего объяснения.

1. Ю. Ф. Комник, Е. И. Бухштаб, *ЖЭТФ* **54**, 63 (1968).
2. Ю. Ф. Комник, Е. И. Бухштаб, Ю. В. Никитин, В. В. Андриевский, *ЖЭТФ* **60**, 669 (1971).
3. Ю. Ф. Комник, В. В. Андриевский, *ФНТ* **1**, 104 (1975).
4. Ю. Ф. Комник, К. К. Маньковский, *ФНТ* **1**, 129 (1975).
5. D. Ronarch and P. Lami, *Thin Solid Films* **36**, 71 (1976).
6. L. Harris and J. Piper, *J. Opt. Soc. Am.* **53**, 1271 (1963).
7. V. De Renzi, M. G. Betti, and C. Mariani, *Phys. Rev.* **B48**, 4767 (1993).
8. Ю. Ф. Огрин, В. Н. Луцкий, М. И. Елинсон, *Письма в ЖЭТФ* **3**, 114 (1966).
9. В. Б. Сандомирский, *ЖЭТФ* **52**, 158 (1967).
10. И. Гольдфарб, Б. Тавгер, *ФТТ* **11**, 1517 (1969).
11. M. Zaluzny and A. Lukasik, *Phys. Status Solidi* **B144**, 575 (1986).
12. А. Я. Шик, *ФТТ* **16**, 2801 (1974).
13. S. Kochowski and A. Opilski, *Thin Solid Films* **48**, 345 (1978).
14. Yu. F. Komnik, E. I. Bukhshtab, V. V. Andrievskii, and A. V. Butenko, *J. Low Temp. Phys.* **52**, 317 (1983).
15. F. Komori, S. Kobayashi, and W. Sasaki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **52**, 368 (1983).
16. А. И. Савченко, А. С. Рылик, В. Н. Луцкий, *ЖЭТФ* **85**, 2210 (1983).
17. B. L. Altshuler, A. G. Aronov, M. E. Gershenzon, and Yu. V. Sharvin, *Sov. Sci. Rev.* A Phys. 9, Schur (Switzerland), Harwood Academic, 223 (1987).
18. В. Н. Молин, В. И. Петросян, П. А. Скрипкина, Б. Н. Тавгер, Э. И. Дагман, М. Д. Блох, *Письма в ЖЭТФ* **14**, 323 (1971).
19. В. Ю. Каширин, Ю. Ф. Комник, *ФНТ* **18**, 1246 (1992).
20. В. Ю. Каширин, Ю. Ф. Комник, *ФНТ* **19**, 410 (1993).
21. Ю. Ф. Комник, В. Ю. Каширин, *ФНТ* **19**, 908 (1993).
22. Ю. Ф. Комник, В. Ю. Каширин, Б. И. Белевцев, Е. Ю. Беляев, *ФНТ* **20**, 158 (1994).
23. P. Chandhari, H. -U. Habermeier, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 430 (1985).
24. М. Ю. Рейзер, А. В. Сергеев, *ЖЭТФ* **90**, 1056 (1986).
25. M. Yu. Reizer, *Phys. Rev.* **B40**, 5411 (1989).

Anomalous size effect in conductivity of Bi films of small thickness

A. S. Anopchenko, V. Yu. Kashirin, and Yu. F. Komnik

Experemental data are obtained at helium temperature, which describe the kinetic properties (conductivity, magnetoresistance and Hall coefficient) of Bi films whose thicknesses are within 100–500 Å. The small-thickness Bi films display an anomalous size effect — the growing conductivity at decreasing thickness, and pronounced quantum interference effects — weak electron localization and enhancing electron-electron interaction in a disordered system. The information derived on the kinetic properties of the films is used to identify the character of the changes in the electron and hole concentrations and mobilities with a decreasing thickness. The isotropy of the properties in the films plane due to the axial texture has permitted us to use the equations for a conductor with two types of charge carriers. The used kinetic characteristics correctly take into account the contribution of the quantum corrections related to quantum interference. It is found that the concentration of the charge carries increases appreciably (by about two orders of magnitude) as the film thickness decreases to 100 Å, which determines the anomalous size effect in the conductivity of the films.

* В работе [22] для пленок висмута толщиной 92 Å значения коэффициентов следует читать: $A^{exp} = 9{,}33 \cdot 10^9\ K^{-1} \cdot c^{-1}$, $A^{theor} = 7{,}81 \cdot 10^9\ K^{-1} \cdot c^{-1}$, $A_4^{exp} = 1{,}82 \cdot 10^8\ K^{-4} \cdot c^{-1}$.