

АНОМАЛЬНОЕ ТЕПЛОВОЕ РАСШИРЕНИЕ СЛОИСТОГО ПОЛУПРОВОДНИКА InSe В ОБЛАСТИ НИЗКИХ ТЕМПЕРАТУР

И. Б. Крынецкий^a, В. А. Кульбачинский^a, Н. П. Шабанова^{b}, А. В. Цыкунов^b,
В. И. Коваленко^b, В. В. Родин^b, С. Ю. Гаврилкин^b*

^a *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119991, Москва, Россия*

^b *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

Статья написана по материалам доклада
на 36-м Совещании по физике низких температур
(Санкт-Петербург, 2–6 июля 2012 г.)

Измерена температурная зависимость линейного коэффициента теплового расширения (КТР) монокристалла InSe в плоскости (001) в области температур 7–50 К. Обнаружен максимум теплового расширения около $T = 10$ К, после которого с ростом температуры образец сжимается. Исследовано влияние на КТР внешнего магнитного поля до 6 Тл, параллельного плоскости (001). Выявлено частичное подавление максимума и сжатия кристалла магнитным полем, указывающее на связь этих аномалий с возможным электронным упорядочением в слоях InSe.

DOI: 10.7868/S0044451013050273

1. ВВЕДЕНИЕ

Селенид индия имеет слоистую структуру с чередованием атомов внутри каждого слоя в последовательности Se–In–In–Se, причем внутрислоевое взаимодействие является ковалентным, тогда как атомы Se соседних слоев связаны между собой значительно более слабым взаимодействием Ван дер Ваальса. Ранее при низких температурах наблюдалось отрицательное тепловое расширение слоистого полупроводника InSe [1–3], что объяснялось возбуждением изгибных колебаний, поляризованных перпендикулярно слою [4], и образованием волны зарядовой плотности (ВЗП) [3]. Обнаруженное нами анизотропное влияние магнитного поля на подобную аномалию в несверхпроводящих диэлектризованных составах слоистых высокотемпературных сверхпроводников [5] указывает на ее электронную природу, связанную, по-видимому, с зарядовым и спиновым упорядочением [6].

В настоящей работе с целью исследования связи механизма этой аномалии в InSe с электронным

упорядочением проведены непосредственное измерение теплового расширения и исследование влияния магнитного поля на коэффициент теплового расширения КТР монокристалла InSe при низких температурах.

2. ОБРАЗЦЫ И МЕТОД ИССЛЕДОВАНИЯ

Исследованные в работе монокристаллы выращивались методом Бриджмена, образцы имели n -тип проводимости. Согласно рентгенографическим данным (рис. 1), исследованный монокристалл имеет ромбоэдрическую решетку, отвечающую γ -политипу, с параметрами решетки $a = 4.011 \text{ \AA}$ и $c = 24.950 \text{ \AA}$. Измерения теплового расширения проводились с помощью тензометрического dilatометра с чувствительностью по относительной деформации $\Delta L/L$ (L — длина образца) не хуже $5 \cdot 10^{-7}$ в нулевом магнитном поле и в постоянном внешнем магнитном поле $H \leq 6$ Тл, параллельном плоскости (001). Датчик деформации приклеивался вдоль произвольного направления в плоскости скола образца, совпадающего с плоскостью (001) кристалла. Датчики изготовлены из сплава 23НМХЮ, магнитоспро-

*E-mail: shaban@sci.lebedev.ru

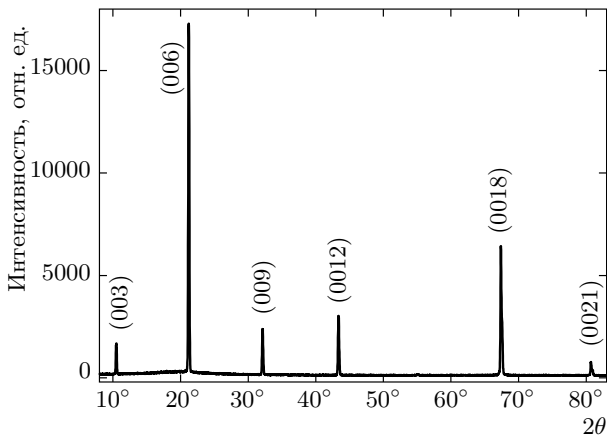


Рис. 1. Рентгеновская дифрактограмма монокристалла InSe на медном излучении

тивление которого при $T = 5.3$ К в магнитном поле $H = 6$ Тл вносит погрешность по относительной деформации не более $1 \cdot 10^{-7}$. Температура образца изменялась со скоростью 0.13 К/мин. Измерения проводились по мостовой схеме относительно плавленого кварца, имеющего малый коэффициент теплового расширения. При определении линейного КТР образца $\alpha = (dL/dT)/L$ в данные вносилась коррекция на КТР кварца. Для управления экспериментом и сбором данных использовался пакет Labview 7.1.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

По результатам измерений теплового расширения монокристалла InSe в нулевом магнитном поле, показанным на рис. 2, видно, что оно имеет ярко выраженный аномальный характер. Вместо ожидаемой плавной кривой $\Delta L/L(T)$ наблюдается резко выраженный максимум при $T \approx 10$ К, после которого с повышением температуры образец сжимается, т. е. имеет место отрицательное тепловое расширение (ОТР), которое в плоскости слоя InSe было выявлено ранее экспериментально прямым дилатометрическим и интерференционным методом [1] при понижении температуры до 20 К, а также по результатам обработки данных нейтронографических исследований в области температур 10–50 К [3], однако максимум не был обнаружен. Область отрицательного коэффициента теплового расширения исследованного нами монокристалла (рис. 3) оказалась несколько ниже по температуре, чем по результатам работы [1], а его сжатие более выражено. Отрицательный КТР образца достигает значений око-

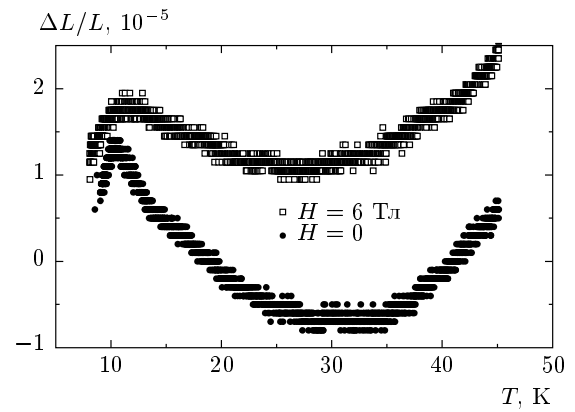


Рис. 2. Температурная зависимость относительной деформации $\Delta L/L$ в плоскости (001) монокристалла InSe в нулевом магнитном поле и в продольном магнитном поле $H = 6$ Тл. Положение экспериментальных кривых относительно нуля оси $\Delta L/L$ произвольно

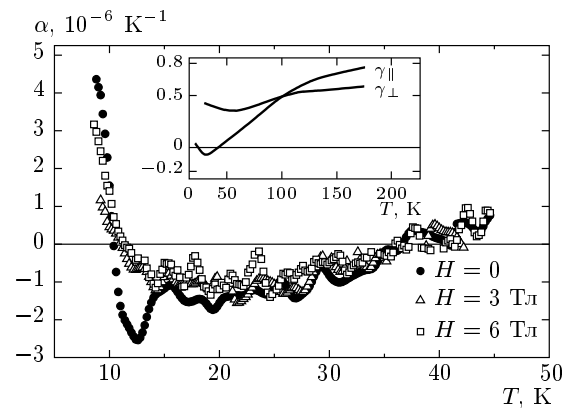


Рис. 3. Температурная зависимость коэффициента теплового расширения α монокристалла InSe в плоскости (001) в продольном внешнем магнитном поле $H = 0, 3, 6$ Тл. На вставке температурная зависимость расчетных параметров Грюнайзена InSe в слое ($\gamma_{||}$) и перпендикулярно слою (γ_{\perp}) из работы [7]

ло $-2 \cdot 10^{-6} \text{ К}^{-1}$. В терминах мембранного механизма ОТР [4] различие может объясняться разной выраженностью анизотропии упругих свойств образцов [1, 2]. Ранее, в работе [7] в рамках модели сильно-анизотропных кристаллов [4] была рассчитана температурная зависимость параметра Грюнайзена слоистого кристалла InSe (вставка к рис. 3), определяющего, как известно, в совокупности с теплоемкостью и упругими постоянными знак и величину линейного коэффициента теплового расширения. При

расчете использовались экспериментальные данные по теплоемкости, тепловому расширению и упругим постоянным InSe [2, 7]. Интересно отметить, что расчетный параметр Грюнайтзена для слоя $\gamma_{||}$ немонотонно изменяется с температурой и становится отрицательным ниже 40 К, что согласуется с особенностями на температурной зависимости линейного КТР исследованного нами кристалла в области температур 15–45 К (рис. 3). Экспериментально выявленный минимум КТР при $T = 12$ К на фоне плавной зависимости, по-видимому, не связан с динамикой кристаллической решетки.

Вероятной причиной возникновения ОТР в материалах с пониженной размерностью может также явиться переход в состояние с волной зарядовой плотности (ВЗП). В настоящее время рассматриваются различные механизмы образования ВЗП в полуметаллах или полупроводниках. В частности, к ним относится сценарий спонтанной конденсации экситонов при низкой температуре в $1T$ -TiSe₂, базирующийся на результатах ARPES [8]. К возможным механизмам возникновения ВЗП относится также зонный эффект Яна–Теллера [9]. Эффект ОТР, наблюдающийся в слоистом полупроводнике TlGaSe₂, объясняется в модели существования областей с отрицательной сжимаемостью в кристаллической структуре слоистого кристалла [10]. Структурные исследования двумерного проводника η -Mo₄O₁₁, проведенные с использованием синхротронного излучения, также подтвердили, что эффект ОТР возникает только в фазе ВЗП [11].

Для выяснения природы обнаруженного максимума и ОТР кристалла InSe были проведены измерения теплового расширения образца при воздействии внешнего магнитного поля 3 Тл и 6 Тл, которое прикладывалось в плоскости (001) в двух геометриях эксперимента — вдоль направления измерения деформации в плоскости (001) и перпендикулярно ему. Обнаружено, что в продольной геометрии магнитное поле оказывает сильное влияние на тепловое расширение монокристалла (рис. 2), а именно, максимум смещается на 2 К в область более высоких температур, приобретая сглаженный характер, уменьшается сжатие кристалла. Как видно на рис. 3, продольное магнитное поле частично подавляет отрицательный КТР InSe, причем при температурах выше 40 К, где КТР положителен, влияния магнитного поля на тепловое расширение не обнаруживается. Аналогичный эффект, наблюдавшийся на диэлектризованных составах слоистых высокотемпературных сверхпроводников, рассматривался как признак электронной природы аномалии, связанной с

ВЗП [5, 6]. Установлено также, что магнитное поле, приложенное в перпендикулярном направлении, практически не оказывает влияния на тепловое расширение образца.

В InSe также предполагается наличие ВЗП при низких температурах [3]. Обнаруженное анизотропное влияние магнитного поля на отрицательный КТР может быть связано с изменением ориентации ВЗП, обусловленным возникновением магнитной анизотропии эффективной массы носителей [12,13] в квантующем магнитном поле. В магнитных полях до 6 Тл квантование хорошо проявляется в осцилляциях магнитосопротивления InSe, при этом заполнено несколько уровней Ландау [14].

Выявленное из эксперимента влияние магнитного поля на максимум теплового расширения в монокристалле InSe может свидетельствовать о его магнитной природе. Так, результаты исследований магнитных свойств слоистых кристаллов In_{1-x}Mn_xSe показали, что при $T \approx 10.9$ К наблюдается максимум динамической восприимчивости, обусловленный, по мнению авторов, переходом в состояние спинового стекла [15]. Необходимо отметить, что прецизионные исследования химического состава исследованного в настоящей работе монокристалла InSe с использованием лазерного микроспектроскопа масс-анализатора LAMMA-1000 показали, что поверхностный слой образца глубиной до 1 мкм содержит атомы Mn в количестве до 0.5 ат. %. Чтобы выяснить, имеет ли обнаруженный максимум теплового расширения магнитную природу, образец охлаждался в магнитном поле $H = 6$ Тл при изменении температуры от $T = 60$ К до $T = 7$ К (FC-режим). На рис. 4 представлены результаты измерений теплового расширения в плоскости (001) кристалла в FC-режиме и в отсутствие внешнего магнитного поля (ZFC-режим). Из сравнения температурных зависимостей кривых можно сделать вывод о влиянии FC на тепловое расширение образца. Прежде всего, максимум теплового расширения смещен в области более высоких температур, уменьшена степень сжатия образца в области ОТР.

Не исключено также, что обнаруженный максимум теплового расширения при $T \approx 10$ К (рис. 2) связан с квантованием энергетического спектра электронов, проявляющимся в осцилляциях магнитосопротивления InSe [14].

Таким образом, в представленной работе проведены непосредственные измерения теплового расширения слоистого монокристалла InSe в плоскости (001) в области низких температур. Установлено, что при температурах ниже 35–40 К наблюдается

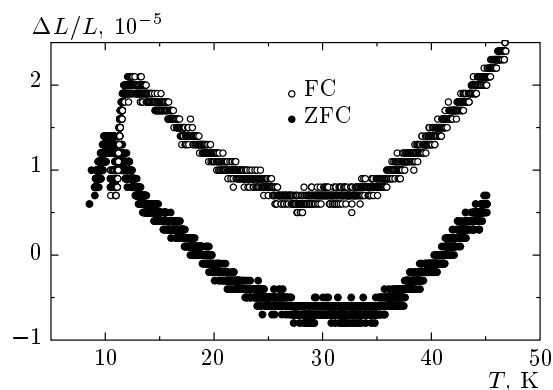


Рис. 4. Температурная зависимость относительной деформации $\Delta L/L$ в плоскости (001) монокристалла InSe, снятая в FC- и ZFC-режимах охлаждения. Экспериментальные кривые смещены по оси ординат для наглядности

эффект ОТР, природа которого связана, скорее всего, с образованием ВЗП [3]. Показано, что внешнее магнитное поле оказывает сильное влияние на поведение фононной подсистемы образца, причем это влияние является анизотропным.

Результаты настоящих исследований теплового расширения монокристалла InSe пока не позволяют сделать однозначного вывода о механизме возникновения ВЗП в селениде индия, однако установленный экспериментально факт влияния магнитного поля на аномальное тепловое расширение InSe в области низких температур свидетельствует, скорее всего, о важной роли электронной подсистемы образца в динамике кристаллической решетки InSe.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 10-02-00139-а), РАН и Министерства образования и науки РФ.

ЛИТЕРАТУРА

1. Г. Л. Беленький, Р. А. Сулейманов, Н. А. Абдуллаев и др., ФТТ **26**, 3560 (1984).
2. Г. Л. Беленький, Э. Ю. Салаев, Р. А. Сулейманов, УФН **155**, 89 (1988).
3. А. И. Дмитриев, В. М. Каминский, Г. В. Лашкарев и др., ФТТ **51**, 2207 (2009).
4. И. М. Лифшиц, ЖЭТФ **22**, 475 (1952).
5. И. Б. Крынецкий, А. И. Головашкин, А. П. Русаков и др., Изв. РАН, сер. физ. **75**, 1177 (2011).
6. А. И. Головашкин, А. П. Русаков, ФТТ **49**, 1363 (2007).
7. Н. А. Абдуллаев, ФТТ **43**, 697 (2001).
8. C. Monney, C. Battaglia, H. Cercellier et al., Phys. Rev. Lett. **106**, 106404 (2011).
9. Н. Р. Hughes, J. Phys. C **10**, L319 (1977).
10. M. Yu. Seyidov and R. A. Suleymanov, J. Appl. Phys. **108**, 063540 (2010).
11. H. Negishi, Y. Kuroiwa, H. Akamine et al., Sol. St. Comm. **125**, 45 (2003).
12. Э. Е. Тахтамиров, В. А. Волков, Письма в ЖЭТФ **71**, 612 (2000).
13. T. Ando, A. Fowler, and F. Stern, Rev. Mod. Phys. **54**, 437 (1982).
14. Н. Б. Брандт, В. А. Кульбачинский, З. Д. Ковалюк и др., ФТП **21**, 1001 (1987).
15. В. В. Слынько, А. Г. Хандожко, З. Д. Ковалюк и др., ФТП **39**, 806 (2005).