

ВЛИЯНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ И ДАВЛЕНИЯ НА ФОНОННЫЙ СПЕКТР УЗКОЩЕЛЕВОГО ПОЛУПРОВОДНИКА FeSi.

**П. П. Паршин¹, П.А. Алексеев^{1,2}, К.С. Немковский³, J. Perßon⁴,
Л. Дубровинский⁵, А. Кантор⁶, А.И. Чумаков^{5,1}, R. Rüffer⁵,**

¹ *Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт»,
123182, Москва, Россия.*

² *НИЯУ «МИФИ», Каширское ш. 31, 115409 Москва, Россия.*

³ *Jülich Centre for Neutron Science, Forschungszentrum Jülich GmbH, Outstation at
MLZ, Lichtenbergstraße 1, 85747 Garching, Germany.*

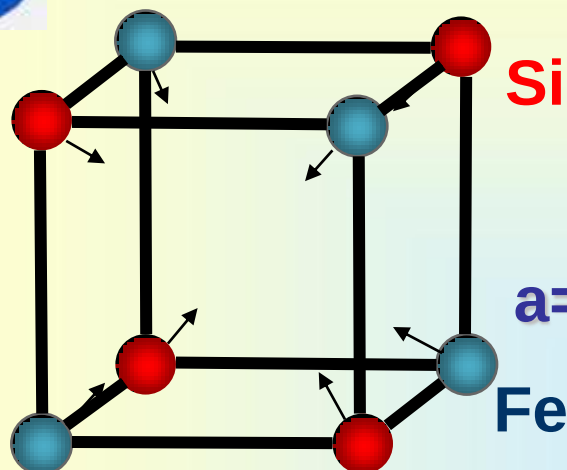
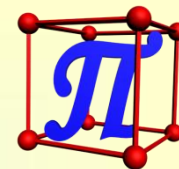
⁴ *Jülich Centre for Neutron Science JCNS and Peter Grünberg Institut PGI, JARA-FIT
Forschungszentrum Jülich GmbH, 52425 Jülich, Germany.*

⁵ *European Synchrotron Radiation Facility, BP220, 38043 Grenoble, France.*

⁶ *Bayerisches Geoinstitut, Universität Bayreuth, Germany.*



Кристаллическая структура FeSi

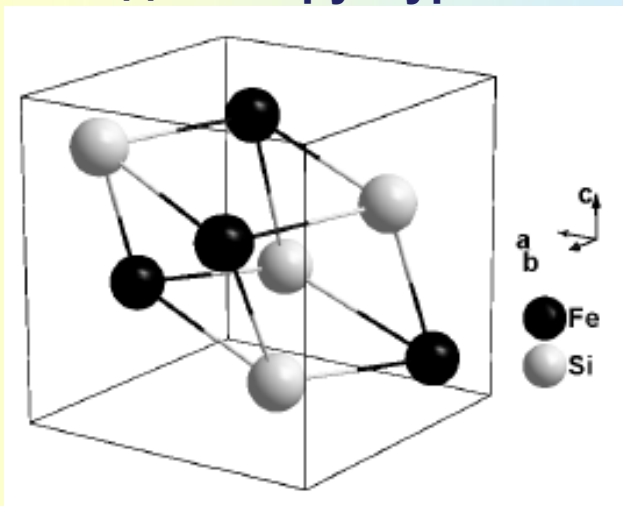


Si

Fe

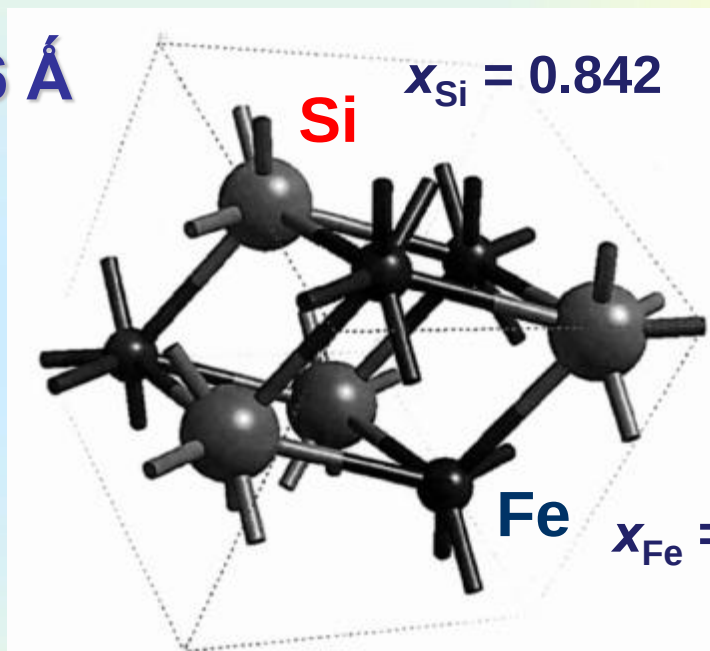
$a = 4.486 \text{ \AA}$

Исходная структура NaCl



Кубическая ячейка FeSi с
восемью атомами, $P2_13$

Четыре атома Fe и четыре атома Si в позициях 4a с координатами (x, x, x) ; $(1/2+x, 1/2-x, -x)$; $(-x, 1/2+x, 1/2-x)$; $(1/2-x, -x, 1/2+x)$.



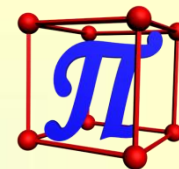
$x_{\text{Si}} = 0.842$

$x_{\text{Fe}} = 0.137$

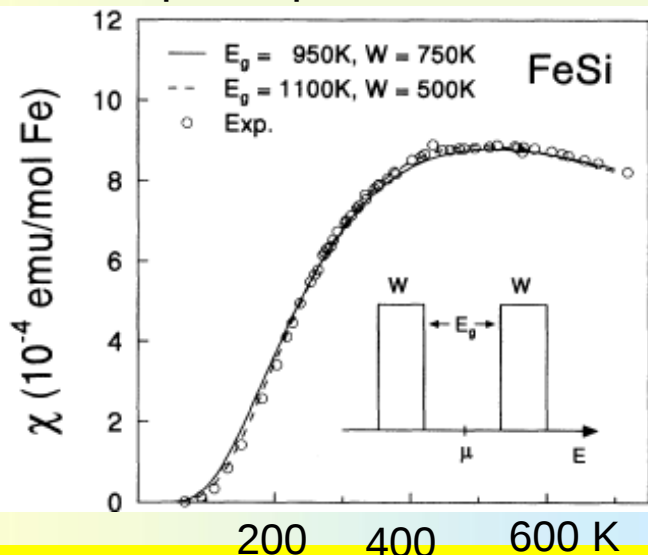
Каждый атом имеет в окружении 7 атомов
другого элемента на расстояниях
 $R_1 = 2.29 \text{ \AA}$ (1 атом), $R_2 = 2.34 \text{ \AA}$ (3 атома),
 $R_3 = 2.52 \text{ \AA}$ (3 атома) и шесть атомов того же
элемента на расстоянии $R_4 = 2.7 \text{ \AA}$



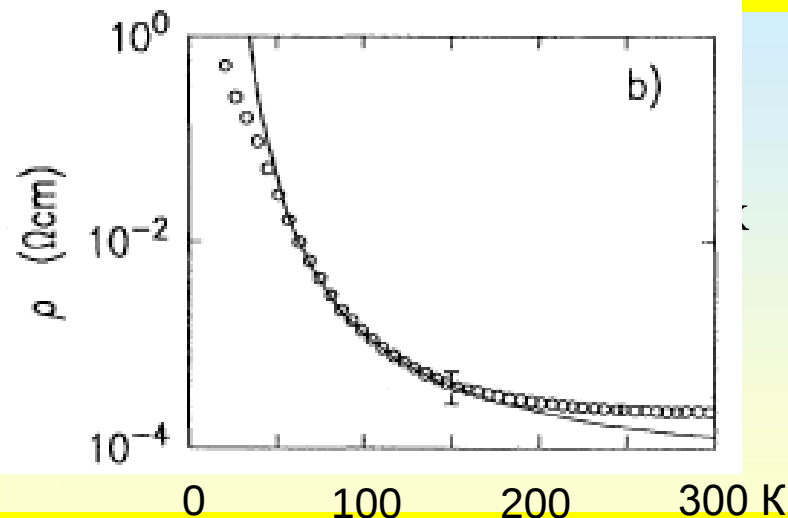
Физические свойства FeSi



Магнитная восприимчивость и
электросопротивление FeSi.

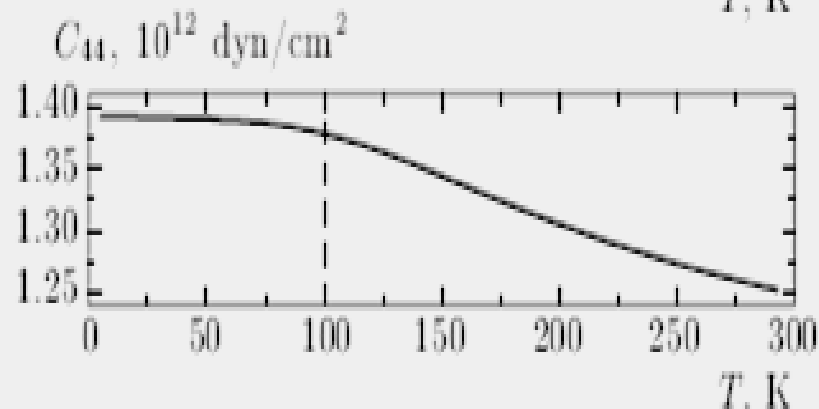
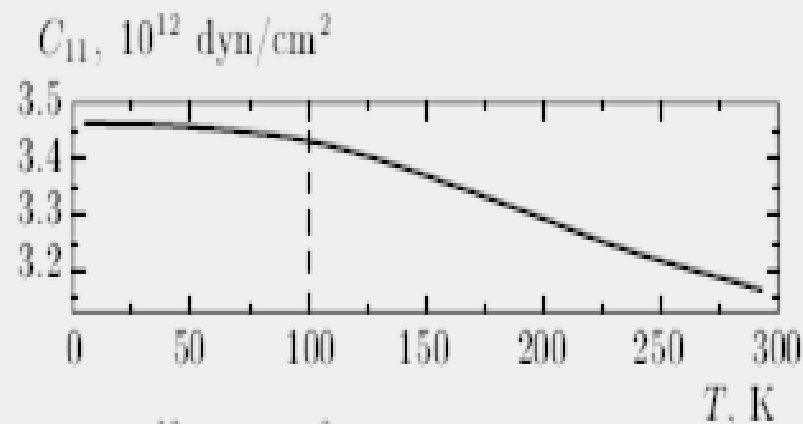


I.V. Jaccarino et. al., Phys. Rev., 160, 176 (1976)



Schlesinger, et.al. Phys. Rev. Lett., **31**, № 11, 1748, (1993).

Температурные зависимости
упругих модулей FeSi.



А.Е. Петрова и др., ЖЭТФ, 138, вып. 3(9), 482 (2010)



Фотоэмиссионная спектроскопия щели в электронном спектре FeSi.

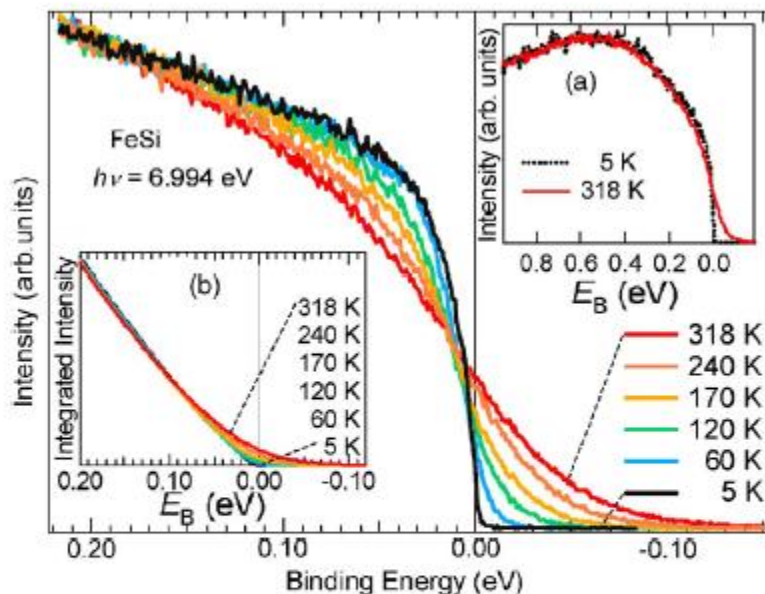
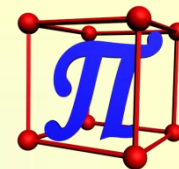


FIG. 1. (Color online) Temperature dependence of the photoemission spectrum $I(E_B)$ for FeSi. Inset (a) shows the spectra in a wider energy region ($-0.2 \leq E_B \leq 0.9$ eV) for the lowest (5 K) and highest (318 K) temperature. Inset (b) shows the integrated intensity $S(E_B) = \int_{-0.18}^{E_B} I(E'_B) dE'_B$ for each temperature.

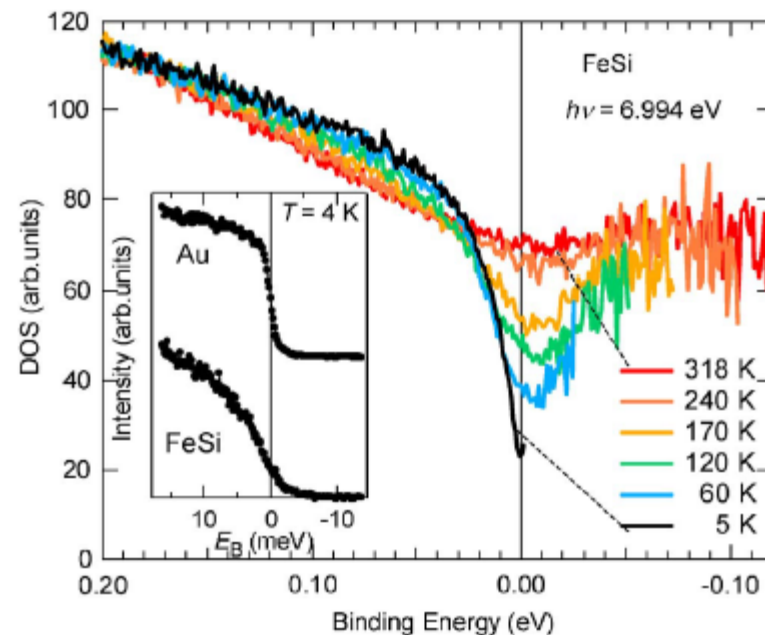


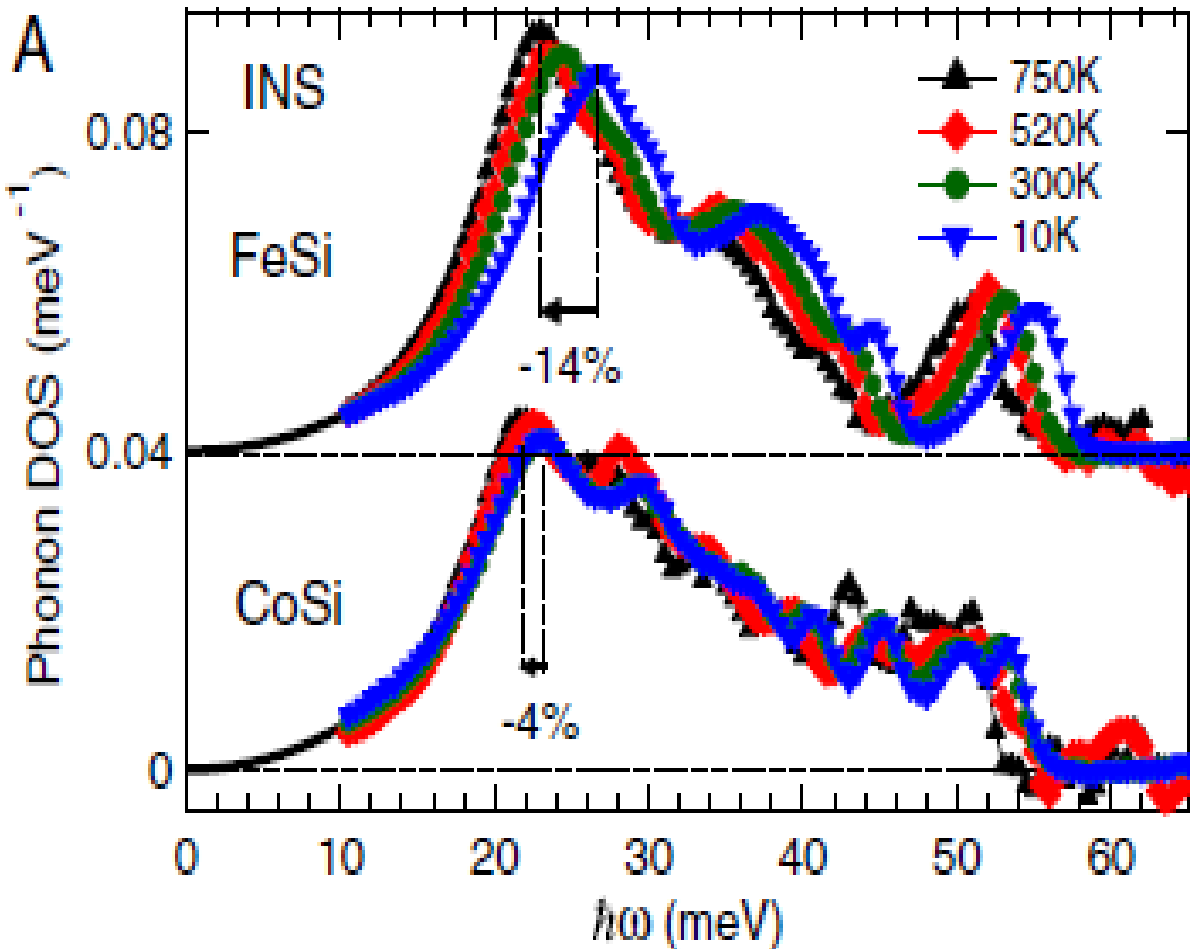
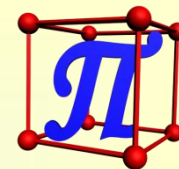
FIG. 2. (Color online) Photoemission spectrum of FeSi divided by resolution-convoluted Fermi-Dirac function for respective temperature, which represents the density of states. The inset shows the photoemission spectrum of FeSi together with Au at 5 K, measured with a higher energy resolution ($\Delta E = 1.3$ meV).

Фотоэмиссионные спектры FeSi, измеренные при различных температурах.

Плотность электронных состояний в FeSi вблизи уровня Ферми.



Нейтронно-взвешенные спектры тепловых колебаний FeSi и CoSi



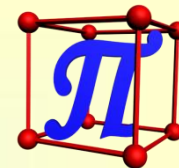
Нейтронный
спектрометр по времени
пролета SNS Oak Ridge
 $E_0 = 100$ мэВ
 $\Delta E = 1.5 - 3.2$ мэВ.

При $\hbar\omega < 10$ мэВ
аппроксимация спектра
Дебаевской зависимостью
 $\text{DOS} \sim E^2$

Считается, что с повышением
температуры амплитуда
тепловых колебаний атомов
становится настолько большой,
что возникающий «тепловой
беспорядок» в расположении
атомов приводит к закрытию
щели в электронном спектре.



Задача:

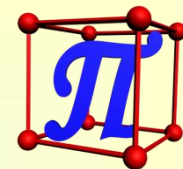


Изучить влияние на формирование силового межатомного взаимодействия в FeSi, как изменения атомного объема, так и степени теплового беспорядка в системе. С этой целью динамика атомов железа в узкощелевом полупроводнике FeSi исследована в зависимости от двух параметров: температуры и давления. В частности, в диапазоне температур 46 – 297 К при $P=0$ и в диапазоне давлений 0.49 – 43 ГПа при $T=297$ К впервые с достаточно высоким разрешением по энергии получены экспериментальные данные об эволюции парциального спектра тепловых колебаний атомов железа.

Метод: Ядерное резонансное неупругое рассеяние синхротронного излучения.



Образец



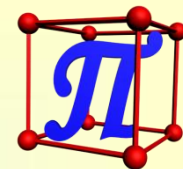
Моносилицид железа FeSi, обогащенный по изотопу Fe⁵⁷ до 94.5%. Образец однофазный, параметр кубической ячейки $a = 4.486 \pm 0.001 \text{ \AA}$, хорошо согласуется с литературными данными, $V_c = 90.28 \pm 0.06 \text{ \AA}^3$ при $T = 297 \text{ K}$. Плотность: 6.22 г/см^3 .

Измерения

Спектрометр Ядерного Резонансного Неупругого Рассеяния ID18 (ESRF, Гренобль, Франция)*.

Измерены спектры рентгеновских фотонов, рассеянных образцом FeSi. Разрешение по энергии 0.53 мэВ и 1 мэВ при вариации давления и температуры соответственно. Время измерения одного спектра ~17 часов.

* R. Rüffer and A.I. Chumakov, Hyperfine Interaction, **97/98**, 589 (1996).

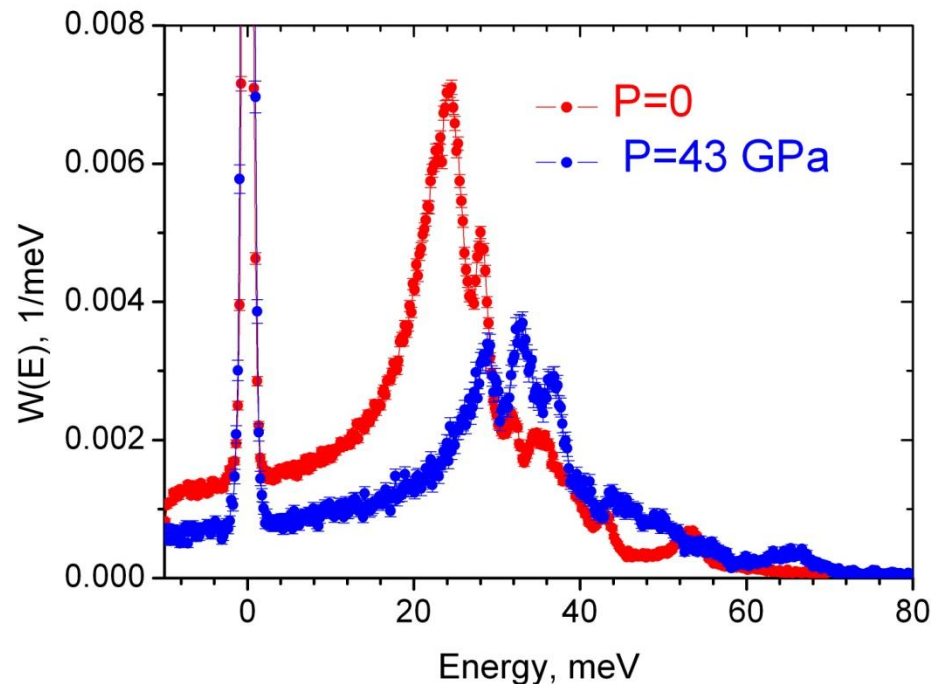
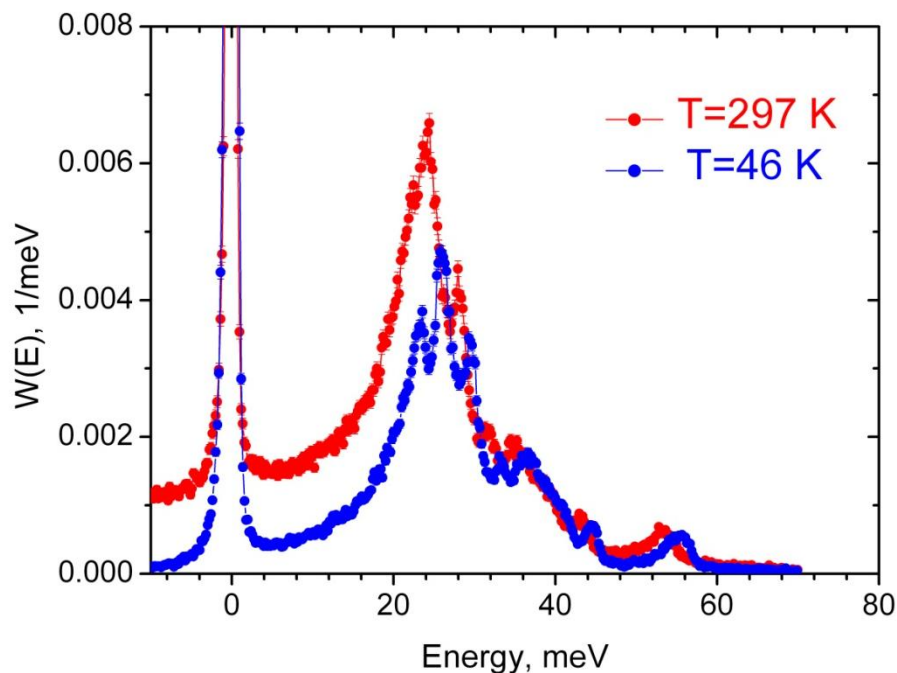
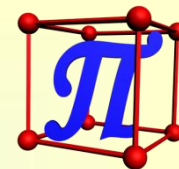


Условия на образце

1. Криорефрижератор замкнутого цикла с регулировкой температуры в интервале 10 – 300 К с точностью 0.1 К. Измерения проведены при температурах 46, 103, 153, 180, 205, 253, 297 К ($P=0$).
2. Алмазные наковальни при комнатной температуре. Среда, передающая давление – парафин. Определение давления по линии люминисценции рубина до и после измерения спектра. Спектры получены при давлениях 0.49, 0.96, 2.0, 11.9, 21.0, 43 ГПа ($T=297$ К).



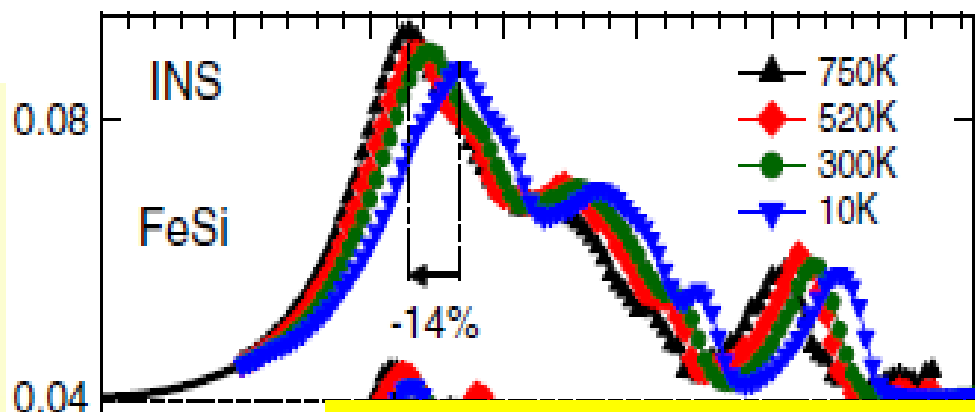
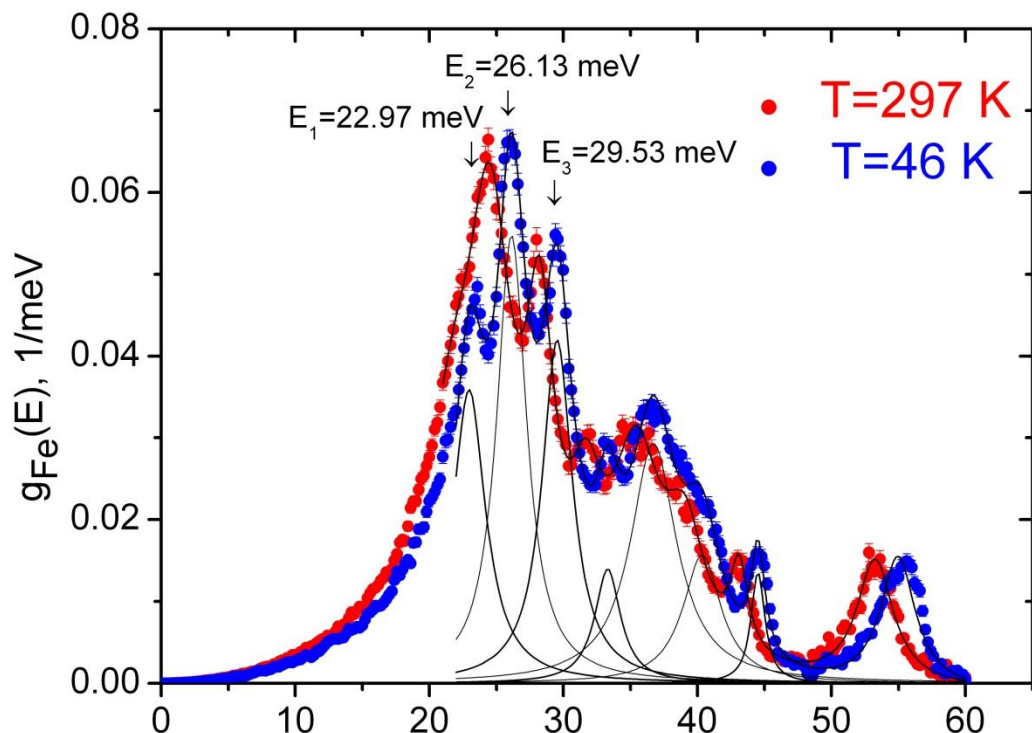
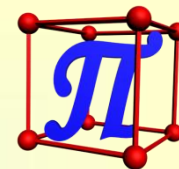
Спектры ядерного резонансного рассеяния СИ на моносилициде FeSi



Спектры, измеренные непосредственно в эксперименте. Пик при $E=0$ Отвечает упругому рассеянию резонансных γ -квантов. Область энергий $E>0$ соответствует процессам рассеяния с рождением фононов.



Парциальные спектры тепловых колебаний атомов железа в моносилициде FeSi



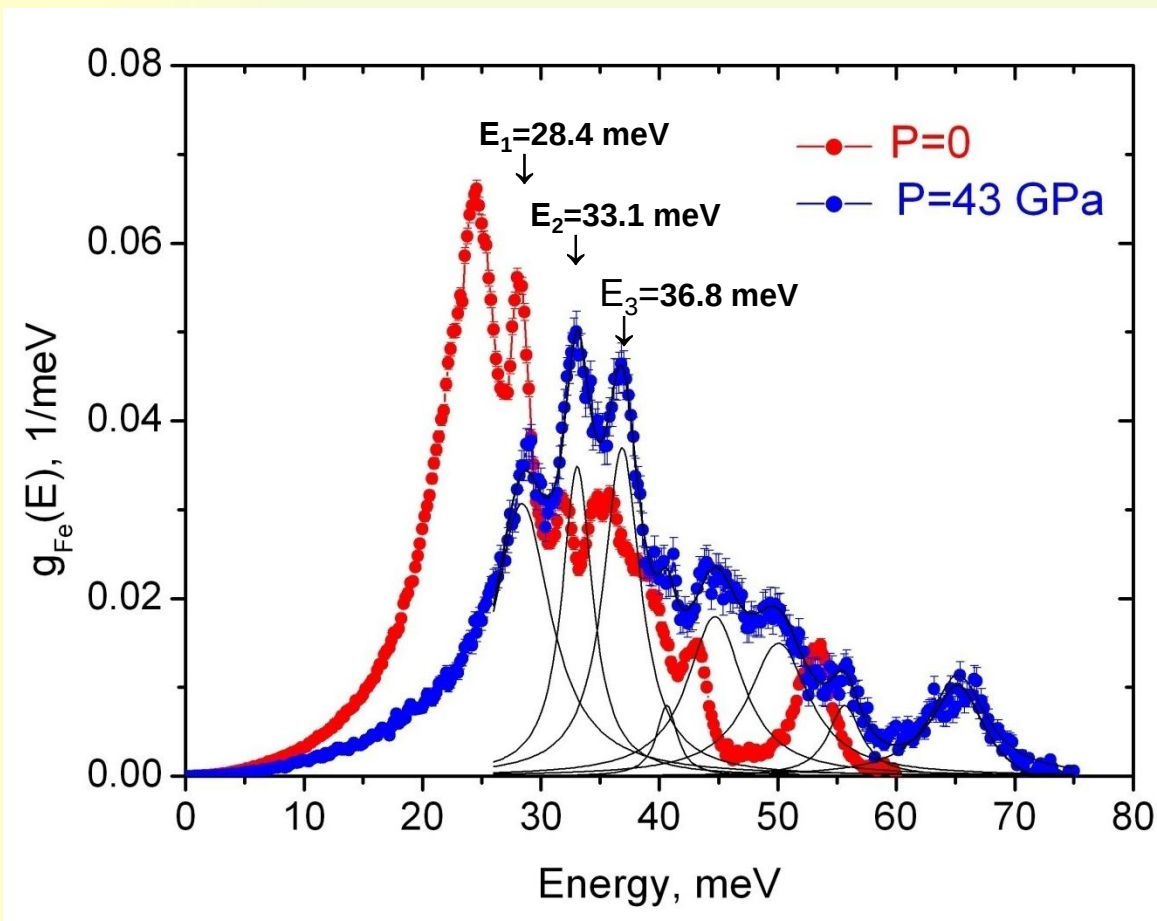
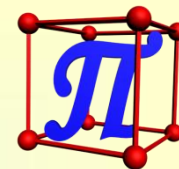
Наблюдения:

С понижением температуры

1. Происходит существенное ужесточение спектра. Все пики смещаются в область больших энергий.
2. Первый максимум спектра, связанный с продольными акустическими фононами вблизи границы ЗБ и с низко-лежащими оптическими ветвями, расщепляется на 2 пика.



Парциальные спектры тепловых колебаний атомов железа в моносилициде FeSi



Наблюдения:

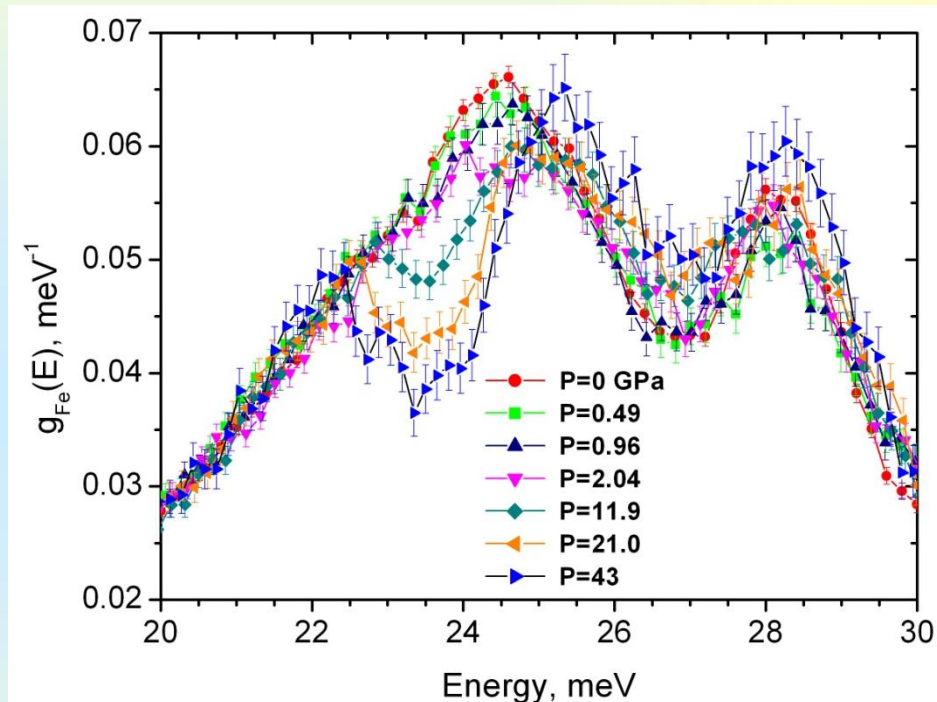
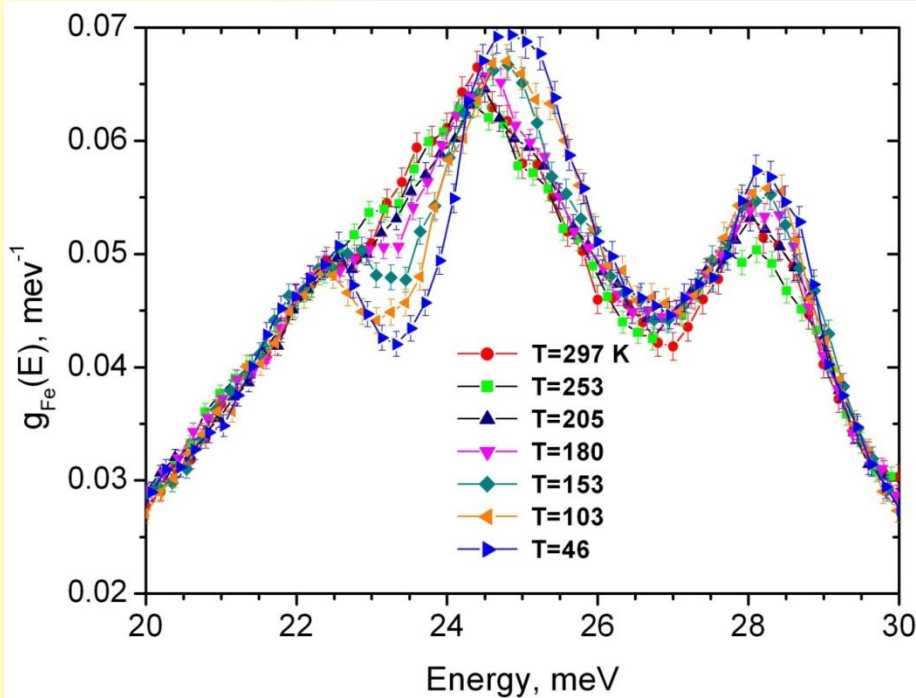
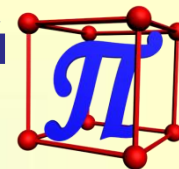
С повышением давления:

1. Происходит существенное ужесточение спектра. Все пики смещаются в область больших энергий.
2. Первый максимум спектра расщепляется на 2 пика.

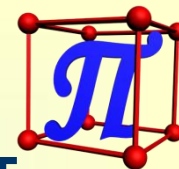
По спектрам рассчитаны температурные и барические зависимости средних термодинамических параметров для атомов железа в FeSi : $\langle u^2 \rangle$ - средний квадрат тепловых смещений, $\langle E_{sp} \rangle$ - средняя по спектру энергия, $B = M \langle E^2 \rangle / \hbar^2$ - средняя константа силовой связи, E_D - энергия Дебая соединения.



Расщепление пиков в спектре тепловых колебаний атомов железа при понижении температуры и при увеличении давления



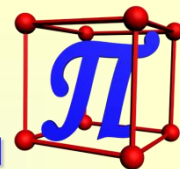
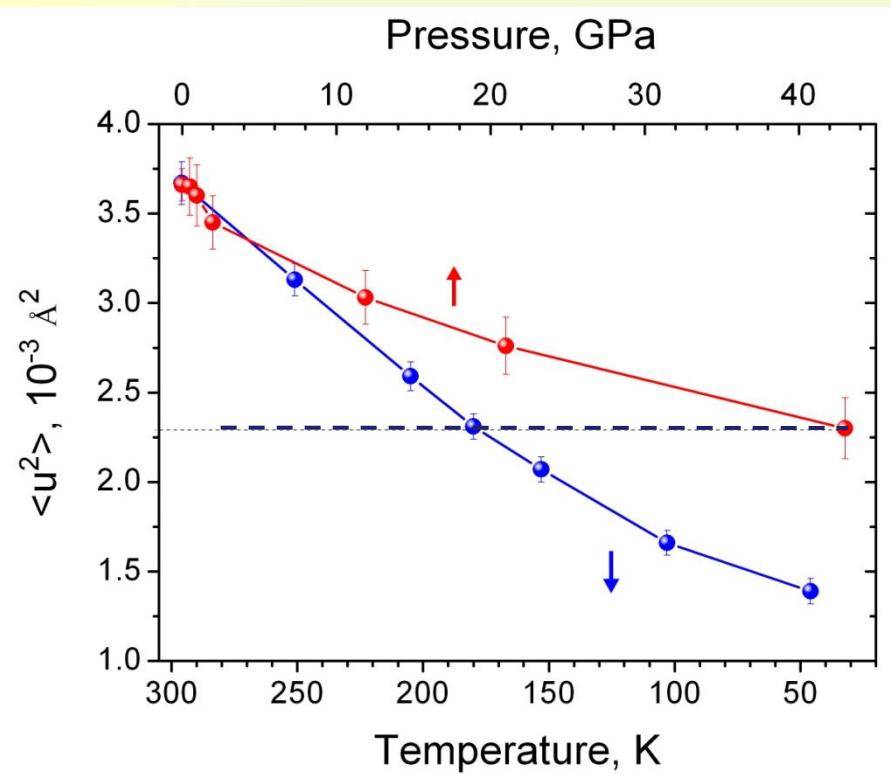
- Наблюдения:**
1. С понижением температуры и увеличением давления возрастает расщепление первых двух пиков спектра.
 2. Заметное расщепление пиков начинается при $T=180$ K и $P=2.0$ ГПа.
 3. Эффект имеет место при уменьшении объема элементарной ячейки.



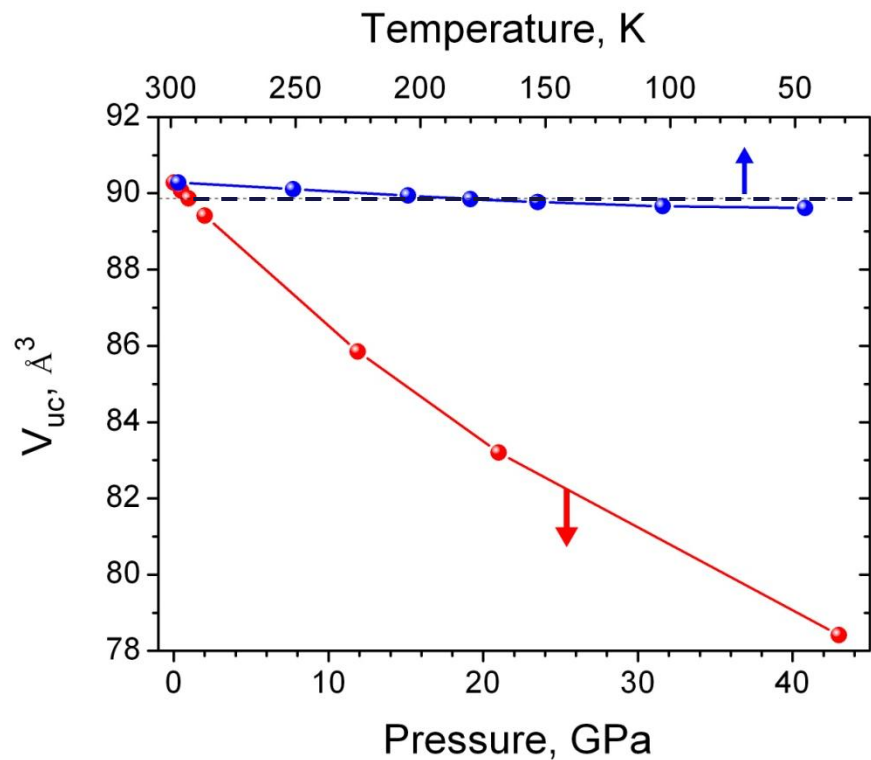
1. Установлено, что при увеличении давления или при понижении температуры происходит заметная перестройка спектра колебаний атомов железа, проявляющаяся в расщеплении первого максимума. Величина расщепления существенно зависит от температуры и давления.
2. Низкоэнергетические пики в спектре колебаний атомов железа, можно отождествить с вкладом в фононный спектр продольных акустических колебаний и низко лежащих оптических мод.
3. Обнаруженный эффект обусловлен изменением дисперсии некоторых из этих ветвей, а следовательно, связан с изменением силового межатомного взаимодействия при понижении температуры или с повышением давления.



Тепловые смещения



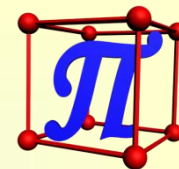
Объем кубической ячейки



Средний квадрат тепловых смещений атомов железа в FeSi существенно изменяется с температурой и заметно слабее зависит от величины давления при комнатной температуре. В тоже время, объем элементарной ячейки уменьшается гораздо сильнее с давлением, чем при понижении температуры.

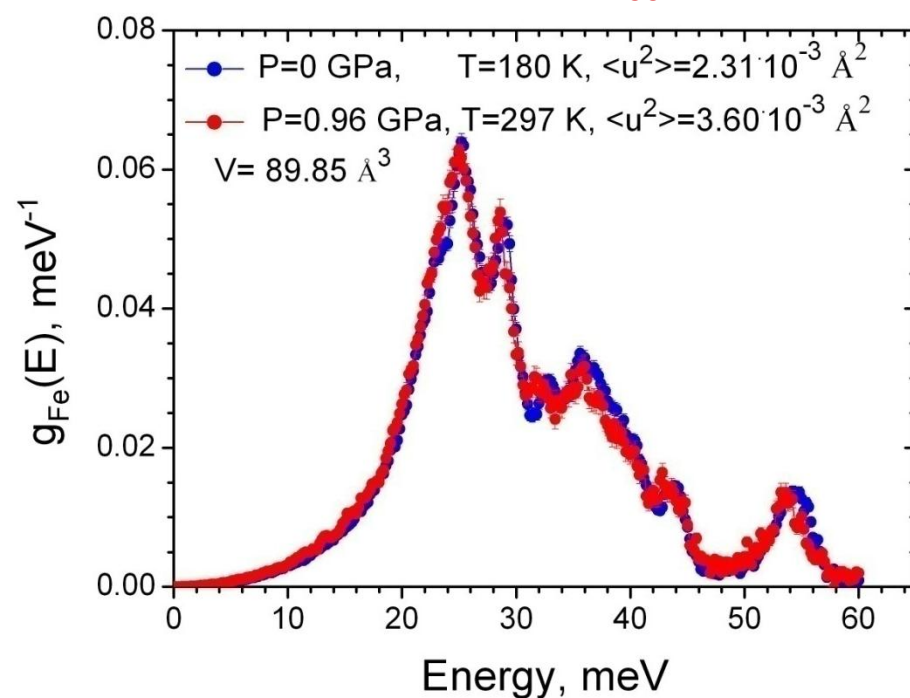
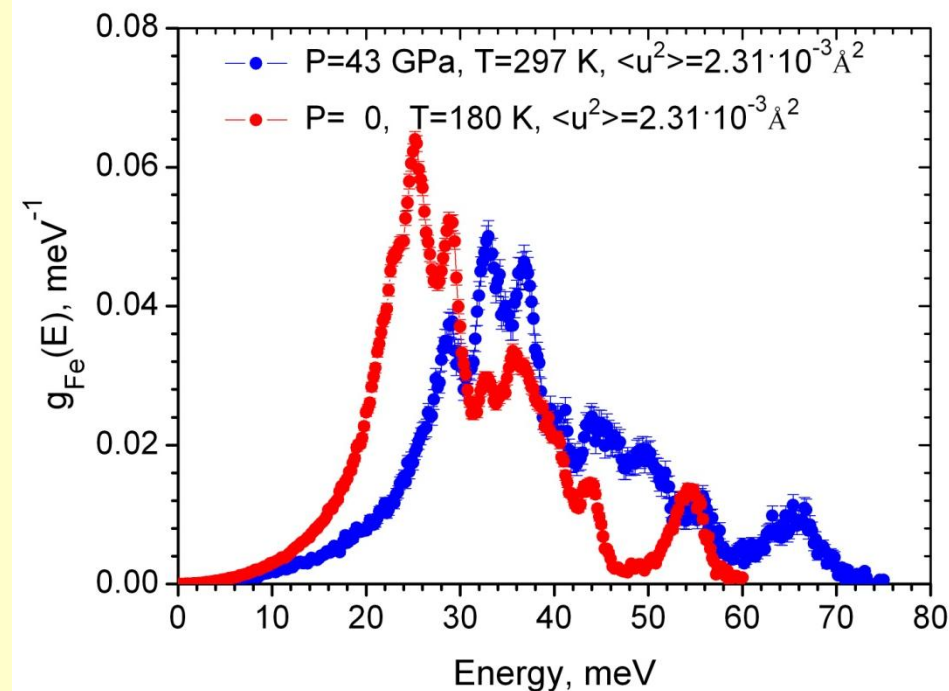


Парциальные спектры тепловых колебаний атомов железа в моносилициде FeSi



Совпадают $\langle u^2 \rangle$

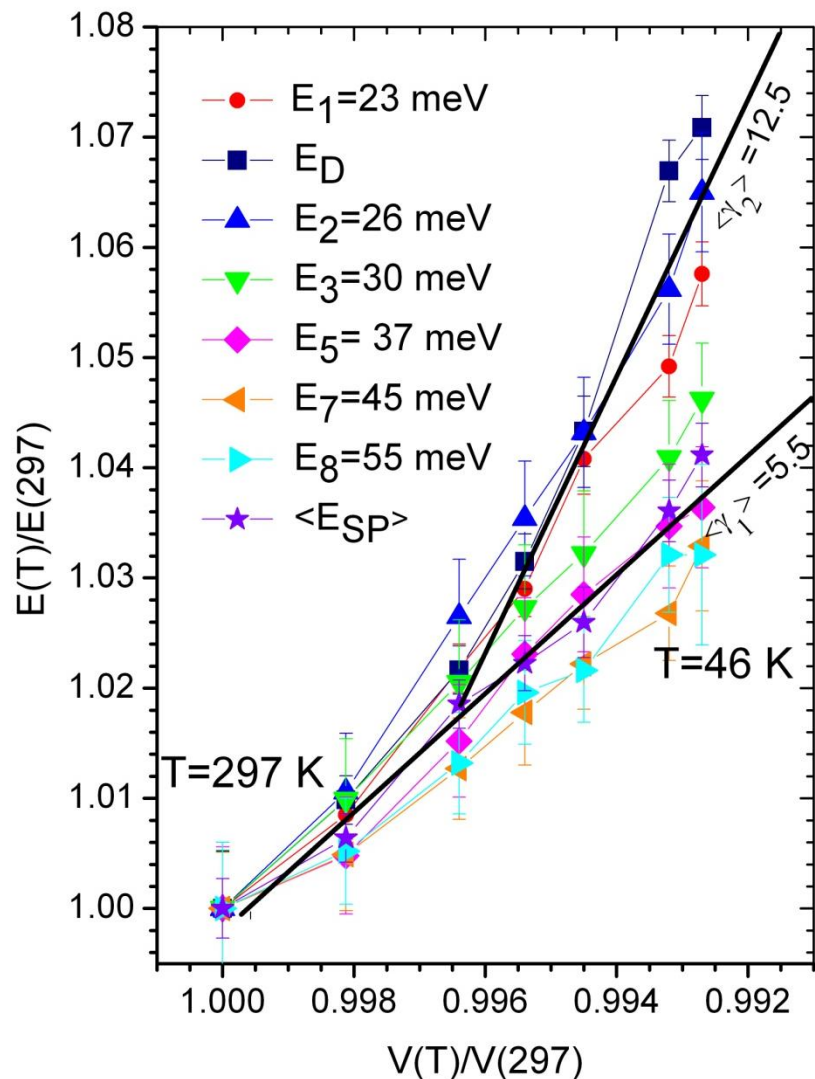
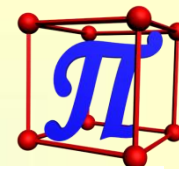
Совпадают $V_{\text{ес}}$



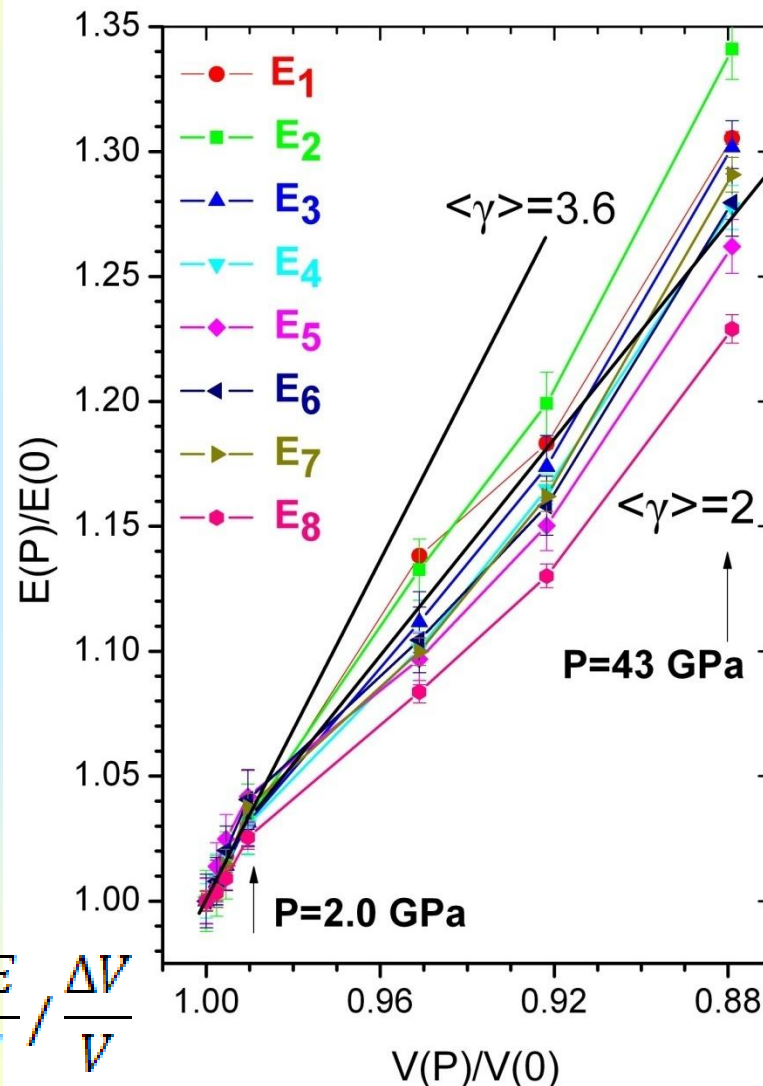
1. Спектры, отвечающие условию одинаковых среднеквадратичных тепловых смещений атомов железа (левая панель) существенно различаются.
2. Спектры, отвечающие условию одинаковых объемов элементарной ячейки (правая панель) практически одинаковы.



Зависимости величин относительных характерных энергий спектра колебаний от относительного объема элементарной ячейки FeSi



Изменение температуры

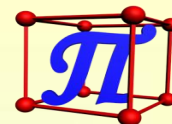


Изменение давления

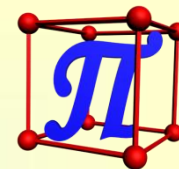
$$\gamma = - \frac{\Delta E}{E} / \frac{\Delta V}{V}$$



Заключение



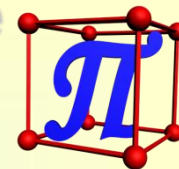
1. Показано, что расщепление первого максимума в спектре колебаний никак не коррелирует с величиной теплового смещения атомов железа и, следовательно, установление теплового порядка при понижении температуры не может служить причиной изменения спектра.
2. Напротив, изменения спектра колебаний хорошо коррелируют с изменением объема элементарной ячейки: имеет место практически полное совпадение спектров, полученных в условиях, когда объемы элементарных ячеек равны.
3. На основе анализа всей совокупности экспериментальных данных установлено, что основной причиной изменений спектра тепловых колебаний атомов железа в FeSi при понижении температуры или при повышении давления является уменьшение объема кубической элементарной ячейки.



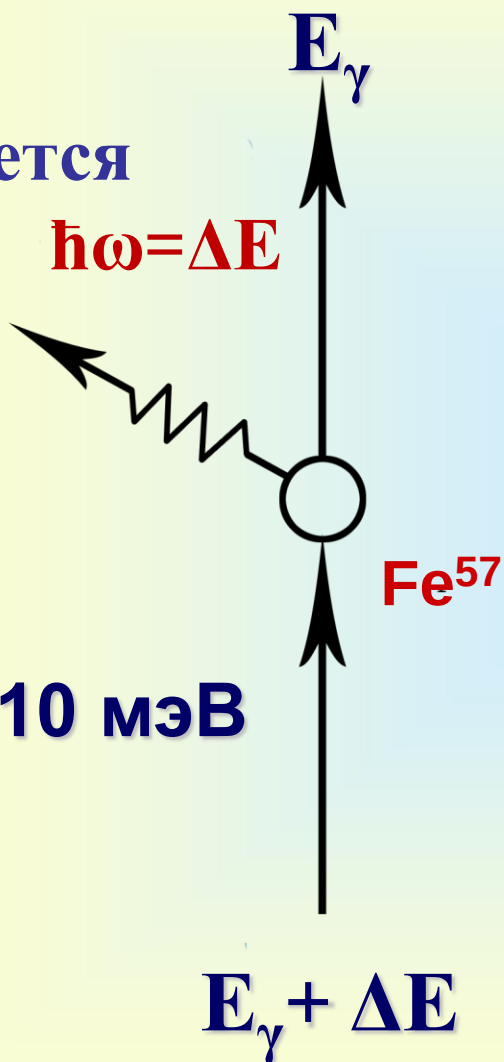
Благодарю за внимание!



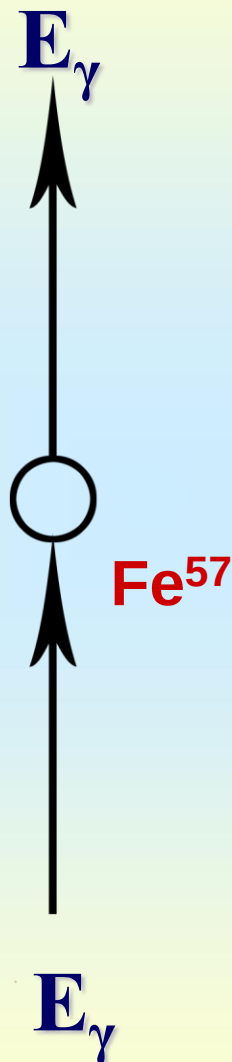
Ядерное резонансное неупругое рассеяние (ЯРНР) синхротронного излучения



Рождается
фонон $\hbar\omega = \Delta E$



$\Delta E \sim 10 \text{ мэВ}$



Поглощается
фонон $\hbar\omega = \Delta E$



Для Fe^{57} :

$$E_\gamma = 14.4125 \text{ КэВ}$$

$$\tau = 141 \text{ нсек}$$

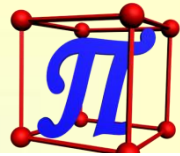
$$\Gamma = 4.66 \text{ нэВ}$$

$$\lambda = 0.8602 \text{ \AA}$$

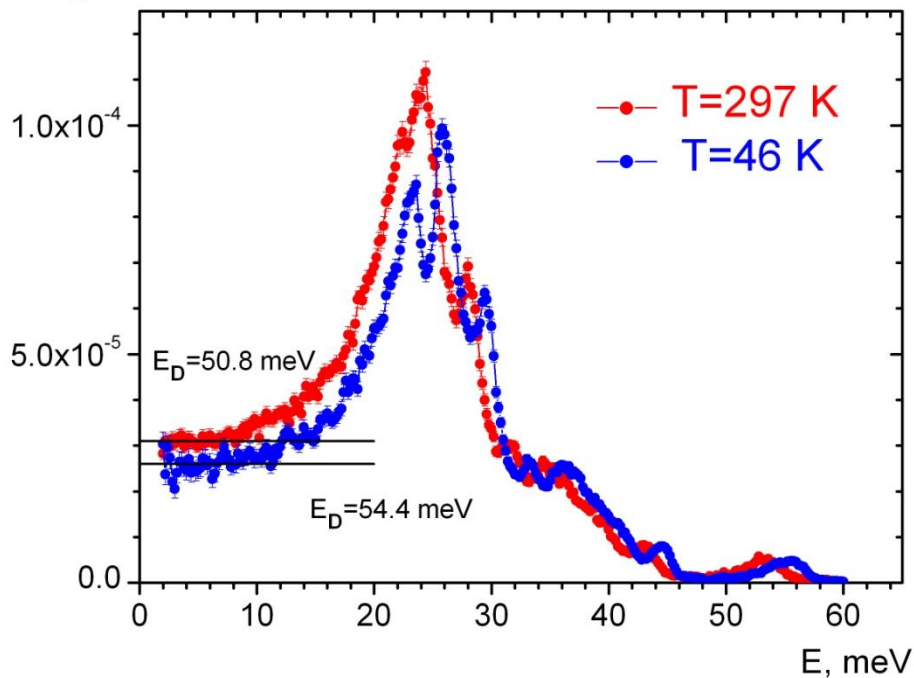
$$|k| = 7.304 \text{ \AA}^{-1}$$



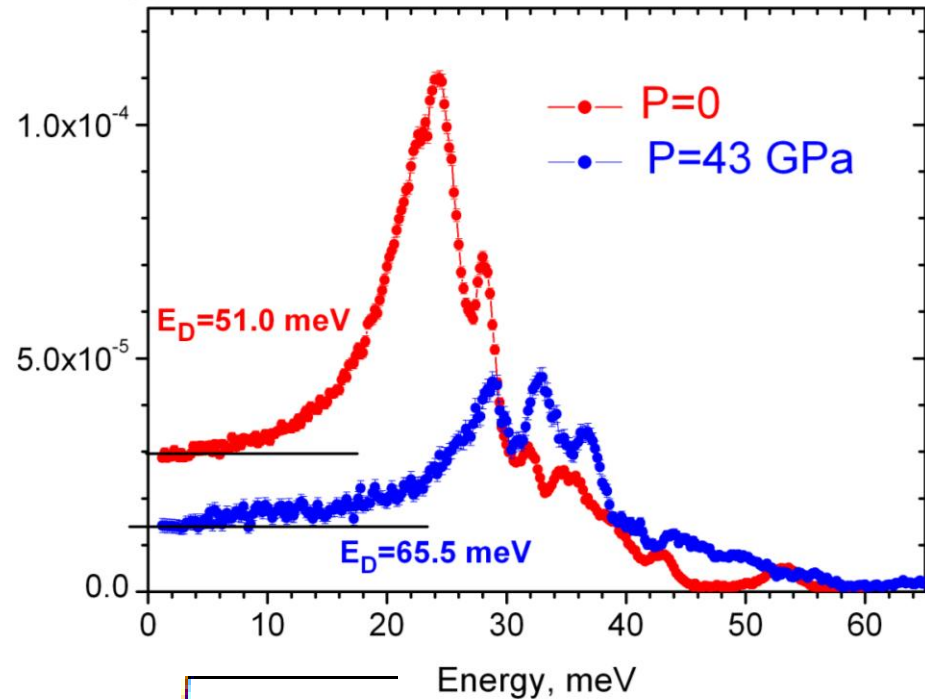
Приведенные спектры $g_{\text{Fe}}(E)/E^2$ для тепловых колебаний атомов железа в моносилициде FeSi



$g_{\text{Fe}}(E)/E^2, 1/\text{meV}^3$



$g_{\text{Fe}}(E)/E^2, 1/\text{meV}^3$



$$A_{\text{res}} = \lim_{E \rightarrow 0} \frac{g_{\text{res}}(E)}{E^2}, \quad E_D = \sqrt[3]{\frac{3M_{\text{res}}}{\langle M \rangle A_{\text{res}}}}$$

A.I. Chumakov et. al. ,
Phys. Rev. B **80**, 094303
(2009).

Наблюдение:

Во всем исследованном диапазоне температур и давлений низко энергетическая часть спектра колебаний атомов железа при $E < 5$ мэВ хорошо описывается Дебаевским законом.