03

Влияние ионизирующего излучения на механизм токопрохождения в монокристаллах TIInSe₂

© Р.С. Мадатов, А.И. Наджафов, Т.Б. Тагиев, М.Р. Газанфаров, М.А. Мехрабова

Институт радиационных проблем НАН Азербайджана,

Баку, Азербайджан E-mail: msrahim@mail.ru

(Поступила в Редакцию 5 апреля 2011 г.)

Исследованы температурная зависимость электропроводности и вольт-амперные характеристики монокристаллов $TIInSe_2$ с удельным сопротивлением $\sim 10^8~\Omega cm$, облученых γ -квантами. Установлено, что наблюдаемые аномалии электропроводности при слабых полях и малых дозах облучения связаны с распадом нейтральных комплексов, в состав которых входит междоузельный атом катиона. В сильных электрических полях происходит термополевая ионизация ловушек. Основным механизмом радиационного дефектообразования является образование комплексов $[V_{\rm In}^- In_i^+]$, $[V_{\rm Se}^- Se_i^-]$ и других со структурными дефектами, характерными для необлученых кристаллов. Определены энергии активации и концентрации ловушек, а также форма потенциальной ямы в области ловушек.

1. Введение

Интерес к полупроводниковым соединениям типа $A^3B^3C^{6/2}$ (A-Tl; B-Ga, In; C-S, Se, Te), обладающих цепочечной структурой, обусловлен перспективностью использования их в полупроводниковом приборостроении [1-3]. Интересным представителем таких полупроводниковых соединений является TlInSe2, который кристаллизуется в тетрагональной решетке типа TISe (пространственная группа симметрии I4/mcm) [4-6]. Атомы T1 в одновалентном состоянии окружены восемью атомами Se, а атомы In в трехвалентном состоянии окружены четырьмя атомами Se. Таллиевые восьмивершинники и индиевые тетраэдры в направлении оси С образуют параллельные восьмивершинники и тетраэдры, связанные общими квадратными основаниями и горизонтальными ребрами [7]. Характерной особенностью этих кристаллов является их способность к образованию дефектов упаковки, которые сильно влияют на физические свойства этих кристаллов [8]. Влияние дефектов упаковки на электрические свойства кристаллов, а также взаимодействие этих дефектов с радиационными дефектами до настоящего времени не исследовано. Поэтому изучение влияния различных внешних факторов на физические свойства соединений TlInSe2 является актуальным. В настоящей работе приводятся результаты исследования влияния у-облучения на механизм токопрохождения в специально нелегированных монокристаллах TlInSe₂ при различных температурах и электрических полях.

2. Методика эксперимента

Монокристаллы выращивались методом направленной кристаллизации, описанным в работе [9]. Монокристаллы имели тетрагональную структуру (параметры решетки: $a=8.061\,\mathrm{\mathring{A}},\ c=6.822\,\mathrm{\mathring{A}})$, обладали p-типом

проводимости с концентрацией дырок $2.5 \cdot 10^{11} \, \mathrm{cm}^3$. Поверхности кристаллов TIInSe2 были зеркально-гладкими, что позволило использовать их для исследований без какой-либо дополнительной обработки. Омические контакты к кристаллам наносились плавлением индия к противоположным поверхностям пластин. Площадь электродов составляла $0.2{-}0.3\,\mathrm{mm}^2$, а расстояние между ними равнялось $\sim 50\,\mu\mathrm{m}$. Были исследованы вольтамперные характеристики (BAX) и электропроводимость в интервалах электрических полей $20{-}10^5\,\mathrm{V/cm}$ и температур $120{-}320\,\mathrm{K}$.

3. Результаты исследований и их обсуждение

На рис. 1 приведены вольт-амперные характеристики монокристалла TIInSe2 при различных дозах у-облучения. Как видно из рис. 1, для всех образцов в интервале электрических полей $1.2 \cdot 10^2 - 2 \cdot 10^5 \,\text{V/cm}$ при $T = 290 \,\mathrm{K}$ на ВАХ имеются линейные и сверхлинейные участки ($I \sim U^n$, где n=1-4.0). Участок I соответствует закону Ома, участок ІІ — квадратичной зависимости $(I \sim U^2)$, участок III — резкому росту тока $(I \sim U^{3-4})$. Анализ кривых проводился в рамках теории инжекционных токов в твердых телах с безактивационной проводимостью [10]. Экспериментальные результаты, полученные при измерениях в области электрических полей ($E < 10^2 \, \text{V/cm}$), показывают, что при облучении ток, величина которого определяется концентрацией носителей заряда исследуемых образцов, уменьшается для доз $2 \cdot 10^5$ rad. Это приводит к удлинению омического участка ВАХ и резкому росту в конце его, за которым следует квадратичный участок ВАХ (рис. 1, кривая 2). Согласно [10], при наличии в образце ловушек с концентрацией, превышающей концентрацию

2 2097

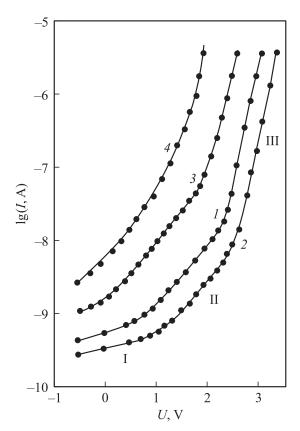


Рис. 1. Вольт-амперные характеристики монокристалла $TIInSe_2$ при различных дозах γ -облучения. D_{γ} , rad: $I=0, 2=1\cdot 10^5, 3=5\cdot 10^5, 4=1.5\cdot 10^7$.

основных носителей, инжектированные носители сначала захватываются ловушками, и концентрация носителей в зоне проводимости практически не изменяется. После дозы $\Phi = 2 \cdot 10^5$ rad величина тока экспоненциально возрастает с дальнейшим ростом дозы облучения Ф (рис. 1, кривые 3, 4), где показатель степени n > 3. Такой характер ВАХ, по-видимому, может быть обусловлен термополевой ионизацией ловушек [11], концентрация которых зависит от дозы облучения. Полученные расчетные и экспериментальные данные в квадратичной области ВАХ ($j \sim L^{-3}$, де L — толщина образца, $\theta \approx 2 \cdot 10^{-6}$ — фактор захвата) показывают, что в монокристаллах TlInSe₂, облученных до $2 \cdot 10^5$ rad, перенос носителей заряда в электрических полях ($E < 10^2 \, \text{V/cm}$) обусловлен монополярной инжекцией и согласуется с теорией Ламперта. При $E > 10^2 \, \text{V/cm}$ наблюдаются отклонения параметров ВАХ от теории Ламперта. В образцах, облученных $\Phi > 2 \cdot 10^5 \, \text{rad}$, протяженность линейного участка BAX при $E < 10^2 \, \mathrm{V/cm}$ оказывается значительно меньшей по сравнению с ВАХ при относительно низких облучениях $\Phi < 2 \cdot 10^5$ rad. Полученные результаты позволяют нам сделать вывод, что облучение кристаллов до 10⁵ rad приводит радиационные дефекты к самокомпенсации и проводимость стремится к собственной. При $\Phi > 2 \cdot 10^5 \, \text{rad}$ в результате распада нейтральных комплексов проводимость образцов увеличивается.

На рис. 2 приведены температурные зависимости электропроводности для кристалла TlInSe2 до и после облучения при различных дозах у-квантов. Видно, что зависимость $\sigma \sim \exp(10^3/T)$, вычисленная для омической области ВАХ, состоит из двух прямых с различными наклонами. Энергии активации уровней в TlInSe₂, определенные по этим наклонам, соответственно равны 0.17 и 0.45 eV. При облучении дозы до 10^5 rad электропроводность ($E < 10^2$ V/cm) образцов уменьшается (кривая 2), а далее растет с повышением дозы облучения (кривая 3). Температурная зависимость электропроводимости образцов при $E > 10^2 \, \text{V/cm}$ (кривые 4-6) показывает, что с ростом дозы облучения величина тока возрастает, а наклон кривых незначительно изменяется. Уменьшение концентрации дырок указывает на то, что при облучении вводятся донорные дефекты. Как отмечалось в [7], уменьшение концентрации дырок при низких дозах у-облучения связано с компенсацией уровня $E_v - 0.17 \,\mathrm{eV}$, который принадлежит ионизованному состоянию собственного акцептора [7]. Подобные результаты были получены для слоистого монокристалла GaSe [12]. Это подтверждает тот факт, что ответственным за аномальные изменения концентрации носителей при облучении является распад нейтральных комплексов, в состав которых входит междоузельный

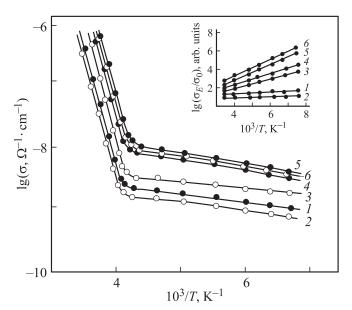


Рис. 2. Зависимость электропроводности монокристалла TIInSe₂ от обратной температуры при различных значениях электрических полей (V/cm) и дозах γ -облучения (D_{γ} , rad): $I - 0.5 \cdot 10^2$ и 0; $2 - 0.5 \cdot 10^2$ и $1 \cdot 10^5$; $3 - 0.5 \cdot 10^2$ и $1 \cdot 10^6$; $4 - 4 \cdot 10^3$ и 0; $5 - 4 \cdot 10^3$ и $1 \cdot 10^5$; $6 - 4 \cdot 10^3$ и $1 \cdot 10^6$. На вставке: зависимость $\lg[\sigma_E/\sigma_0]$ от 1/T при различных значениях электрических полей (10^3 V/cm) и дозах γ -облучения (D_{γ} , rad): $1 - 0.5 \cdot 10^2$ и 0; $2 - 0.5 \cdot 10^2$ и $1 \cdot 10^5$; $3 - 0.5 \cdot 10^2$ и $1 \cdot 10^6$; $4 - 4 \cdot 10^3$ и 0; $5 - 4 \cdot 10^3$ и $1 \cdot 10^6$.

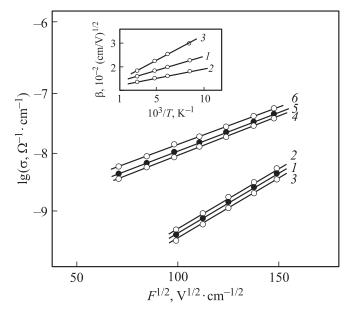


Рис. 3. Зависимость электропроводности монокристалла TIInSe₂ от квадратного корня из значений электрических полей при различных дозах γ -облучения $(D_{\gamma}, {\rm rad})$: 120 К $(I-0, 2-1\cdot 10^5, 3-5\cdot 10^5)$, 300 К $(4-0, 5-1\cdot 10^6, 6-1.5\cdot 10^7)$. На вставке: зависимость коэффициента β от $10^3/T$ при различных дозах γ -облучения $(D_{\gamma}, {\rm rad})$: $I-0, 2-1\cdot 10^5, 3-1\cdot 10^6$.

атом катиона. ВАХ, полученные при $E > 10^2$ V/ст в области резкого роста тока после квадратичного участка, обработаны в соответствии с теорией термоэлектронной ионизации Френкеля [13–15].

На вставке рис. 2 показана зависимость $\lg[\sigma_E/\sigma_0]$ от 1/T при различных значениях электрического поля и дозах облучения. Видно, что с ростом электрического поля увеличивается наклон кривых (кривые 1 и 2). Согласно теории [10], это означает, что между эффективной энергией активации носителей и квадратным корнем из напряженности электрического поля существует линейная зависимость. Аналогичные закономерности наблюдались и для облученных образцов при различных дозах γ -облучения (кривые 1-6). Увеличение наклона кривых с ростом дозы облучения при различных электрических полях свидетельствует о том, что радиационные дефекты стимулируют миграцию и перераспределение исходных дефектов в кристаллической решетке [16], что и приводит к сужению эффективной глубины ловушки в энергетическом зазоре.

На рис. З приведены зависимости $\lg \sigma$ от $F^{1/2}$ для облученных образцов p-TlInSe $_2$ при различных значениях температуры в интервале электрических полей $1.2 \cdot 10^3 - 2 \cdot 10^5$ V/cm. Видно, что экспериментальные точки хорошо ложатся на прямые с различными наклонами. Наклоны этих кривых с уменьшением температуры увеличиваются, что находится в полном соответствии с теорией эффекта Пула-Френкеля и указывает на рост вероятности полевой ионизации ловушек. Тем-

пературная зависимость β , определенная из зависимости $\sigma(F^{1/2})$ при различных дозах облучения, приведена на вставке рис. 3. Как видно из рисунка, наблюдается рост β с уменьшением температур и экстраполяция зависимости $\beta \sim 10^3/T$ проходит через начало координат, что согласуется с теорией Френкеля. Следует подчеркнуть, что изменение β наблюдается также при облучении γ -квантами, что обусловлено изменением диэлектрической проницаемости, которая изменяется от 10 до 11 [10].

С помощью [13] определены величины концентрации ловушек N_1 и свободных носителей N_t до и после облучения γ -квантами, которые меняются $6.4 \cdot 10^{16} - 2.04 \cdot 10^{17} \, \mathrm{cm}^{-3}$ и $2 \cdot 10^{13} - 2.7 \cdot 10^{14} \, \mathrm{cm}^{-3}$ соответственно. По разности значений N_t была вычислена концентрация радиационных дефектов в монокристалле TIInSe₂. Обнаружено увеличение значений N_t при высоких дозах облучения по сравнению с необлученными образцами, что наблюдалось также в [13,14].

На рис. 4 приведена форма потенциальной ямы, рассчитанная на основе экспериментальных данных согласно методу, описанному в [17]. Как указывается в [17], чтобы электрон покинул центр, должно выполняться условие $\varepsilon_c > E_0 - \Delta U_0$ (E_0 — глубина уровня, на котором локализован электрон, ΔU_0 — понижение потенциального барьера в электрическом поле). Длина свободного пробега электрона (λ) и расстояние от ловушки до максимума потенциальной ямы (r_m) в монокристаллах TlInSe2, вычисленные на основе экспериментальных данных, равны $\lambda \sim 7.9 \cdot 10^{-6} \, \mathrm{cm}$ и $r_m \sim 4.3 \cdot 10^{-6} \, \mathrm{cm}$. Сравнение полученных данных λ и r_m показывает, что длина свободного пробега электрона больше эффективных размеров потенциальной ямы, поскольку это

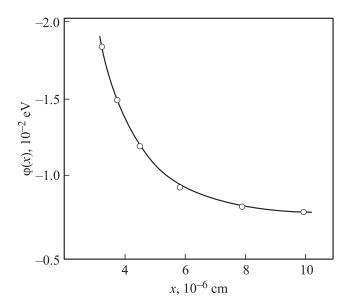


Рис. 4. Форма потенциальной ямы в облученном монокристалле $TlInSe_2$.

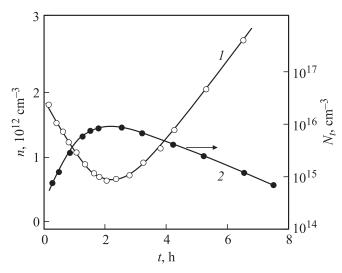


Рис. 5. Расчетная зависимость концентраций n (I) и N_t (2) от длительности γ -облучения.

условие выполняется также при облучении γ -квантами ($\lambda > r_m$).

На рис. 5 представлена расчетная зависимость концентраций n(1) и $N_t(2)$ от длительности γ -облучения. Как следует из рис. 5, для монокристалла TlInSe₂ с увеличением дозы облучения до 3 · 10⁵ rad концентрация свободных носителей (кривая 1) в специально нелегированных p-TlInSe₂ постепенно понижается, затем снова повышается с дальнейшим ростом дозы облучения. Согласно [14], уменьшение концентрации дырок указывает на то, что при низких дозах облучения вводятся донорные радиационные дефекты. Рост концентрации дырок в результате воздействия выше 3 · 10⁵ rad вызван возрастанием концентрации $N_a - N_d$, происходящим практически экспоненциально с дозой со скоростью $\Delta (N_a - N_d)/\Phi = 10^{-3} \, \mathrm{cm}^{-1}$, где $\Delta(N_a - N_d)$ — изменение $N_a - N_d$. Таким образом, в результате у-облучения образцов TlInSe₂ происходят радиационно-стимулированные процессы, связанные с активизацией процесса миграции собственных дефектов под действием у-облучения.

Полученные экспериментальные и расчетные данные в квадратичной области BAX $(j\sim L^{-3},~\theta\approx 2\cdot 10^{-6})$ показывают, что в облученых монокристаллах TIInSe2 перенос носителей заряда в электрических полях $(E<10^2\,\mathrm{V/cm})$ обусловлен монополярной инжекцией. Резкий рост тока в сильных полях $(E>10^2\,\mathrm{V/cm})$ связан термополевой ионизацией локальных ловушек. Это предсказывается теорией Френкеля, согласно которой при ионизации центров энергия активации носителей тока уменьшается с ростом поля на величину $2e(eE/\epsilon)^{1/2}$. Линейная температурная зависимость коэффициента $\beta\sim 1/T$, определенная из зависимости $\lg\sigma\sim f(\sqrt{F})$ при различных температурах (рис. 3), указывает на применимость теории Френкеля для объяснения полученных данных.

Таким образом, при у-облучении монокристаллов TlInSe₂ происходят радиационно-стимулированные процессы, связанные с активизацией процесса миграции собственных дефектов под влиянием у-облучения. Это приводит к нарушению трансляционной инвариантности кристаллической структуры и изменению зарядовых состояний локализованных уровней в запрещенной зоне кристалла, что создает условия для осуществления механизма термополевой ионизации. С использованием экспериментальных данных и согласно [17] определена глубина потенциальной ямы обнаруженных центров, а также вычислена длина свободного пробега носителей тока. Величина длины свободного пробега в кристаллах $TIInSe_2$ составляет $\sim 7.9 \cdot 10^{-6}$ cm. Полученные данные позволяют предположить, что в электрических полях более 10⁴ V/cm выполняются условия [10] для полевой ионизации ловушек.

4. Заключение

В результате проведенных исследований установлено, что в кристаллах TlInSe2, обладающих дефектами упаковки, основным механизмом дефектообразования являются структурные дефекты катионного и анионного происхождения. Под действием облучения радиационные дефекты взаимодействуя, в зависимости от дозы у-квантов приводят к частичной компенсации, а в дальнейшем — к стимулирванию дефектообразования. Совокупность экспериментальных данных об электропроводности облученных кристаллов TlInSe₂ в широком интервале температур и электрических полей хорошо согласуется с теорией Френкеля. Это позволяет заключить, что наблюдаемый эффект поля связан со структурными особенностями исходных дефектов, а радиационные дефекты, вводимые у-квантами, стимулируют процесс ионизации ловушек с энергией 0.17 eV и не влияют заметным образом на характер электропроводности монокристаллов TlInSe₂.

Список литературы

- [1] И.В. Алексеев. ФТП 32, 5, 588 (1998).
- [2] А.У. Шелег, В.Г. Гуртовой, С.Н. Мустафаева, Э.М. Керимова. ФТТ **53**, *3*, 443 (2011).
- [3] С.Н. Мустафаева, М.М. Асадов, А.А. Исмайлов. ФТТ 51, 11, 2140 (2009).
- [4] D. Muller, G. Eulenberger, H. Hahn, Z. Anorg. Allg. Chem. 438, 258 (1982).
- [5] G. Guseinov, A.M. Ramanzade, E.M. Kerimova, M.Z. Ismailov. Phys. Stat. Sol. 22, K117 (1967).
- [6] S. Bradtmuller, R. Kremer, P. Buttcher. Anorg. Allg. Chem. 620, 1073 (1994).
- [7] Р.С. Мадатов, А.И. Наджафов, Т.Б. Тагиев, М.Р. Газанфаров. Изв. НАН Азерб. Сер. физ-мат. наук. 30, 2, 100 (2010).
- [8] S. Kashida, K. Nakamura, S. Katayama. Solid State Commun. 82, 127 (1992).

- [9] О.М. Алиев, А.И. Наджафов, Т.Ф. Магсудова, П.Г. Рустамов, О.А. Алиева, Н.М. Зейналов. АС СССР № 1199162 (1985).
- [10] М. Ламперт, П. Марк. Инжекционные токи в твердых телах. Мир, М. (1973). 416 с.
- [11] Я.И. Френкель. Сб. изб. тр. Изд-во АН СССР, М.–Л., (1958). Т. 2. С. 600.
- [12] Г.Б. Абдуллаев, А.З. Абасова, А.М. Горшков, Ф.А. Заитов, В.И. Стафеев, Э.Ю. Салаев, Г.М. Шаляпина. ФТТ 16, 6, 1136 (1982).
- [13] O.B. Tagiev, G.H. Kasimova. Phys. Status Solidi A 128, 167 (1981).
- [14] Ya.I. Frenkel. Phys. Rev. 54, 657 (1938).
- [15] Р.С. Мадатов, А.И. Наджафов, В.С. Мамедов, М.А. Мамедов. Изв. НАН Азерб. Сер. физ-мат. наук. 27, 2, 100 (2008).
- [16] В.С. Вавилов, Н.А. Ухин. Радиационные эффекты в полупроводниках и полупроводниковых приборах. Атомиздат, М. (1969). 191 с.
- [17] А.Н. Георгобиани, В.И. Демин, Е.С. Логазинская. Тр. ФИАН им. П.Н. Лебедева 182, 69 (1987).