

ФОТОПРОВОДИМОСТЬ В ПЛЕНКАХ PbS ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ ПИКОСЕКУНДНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ СВЕТА

Томашюнас Р., Пятраускас М., Вайткус Ю.,
Синюс Я., Гашка Р., Власкин А.

Представлены результаты экспериментального исследования фотопроводимости в химически осажденных поликристаллических пленках PbS. Сделаны теоретические оценки полученных результатов. Определено влияние степени термоотжига пленок на рекомбинацию носителей заряда, а также на их подвижность. Получено, что в сильновозбужденных пленках PbS доминирующим механизмом рекомбинации носителей заряда является межзонная ударная рекомбинация в объеме кристаллитов с коэффициентом $\gamma_A \approx 5.3 \cdot 10^{-29} \text{ см}^6/\text{с}$.

Успехи в разработке новых оптических систем связи и обработки информации выявили потребность к созданию и исследованию фотодетекторов, способных регистрировать ультракороткие световые импульсы в диапазоне длин волн 0.8–5 мкм. Перспективными для этих целей являются неупорядоченные полупроводники соединений $A^{IV}B^{VI}$ — PbTe, PbS, PbSe, в том числе поликристаллические пленки. Однако вопрос о механизме рекомбинации носителей заряда в тонких пленках PbX до настоящего времени остается дискуссионным. Многочисленные теоретические и экспериментальные работы различных авторов [1–4] представили модели о рекомбинационных процессах в поликристаллических пленках при слабом их возбуждении. В данной работе мы представляем результаты, выявляющие доминирующий механизм рекомбинации носителей заряда в сильновозбужденных пленках PbS.

Фотопроводимость в сильновозбужденной пленке определяется концентрационной зависимостью времени жизни [5] и подвижности носителей заряда. Известно, что в соединении PbS при концентрациях $n \geq 10^{16} \text{ см}^{-3}$ релаксацию фотопроводимости определяет междузонная ударная рекомбинация [6]; при этом влияние излучательной рекомбинации несущественно. Известно [7], что концентрацию неравновесных носителей заряда в пленках одновременно определяют три механизма рекомбинации: ударная, излучательная и рекомбинация через ПС, поэтому постоянную релаксации концентрации носителей можно представить в виде $\tau^{-1} = \tau_{PA}^{-1} + \tau_{PR}^{-1} + \tau_{PS}^{-1}$, где τ_{PA} , τ_{PR} , τ_{PS} — средние времена релаксации концентрации носителей заряда, обусловленные ударной, излучательной и рекомбинацией через ПС соответственно. Вопрос конкуренции механизмов рекомбинации особенно проблематичен при слабом возбуждении, что тесно связано с распределением равновесных носителей заряда в кристаллитах пленки. Естественно, что это распределение зависит от потенциального рельефа в пленке. На потенциальный рельеф влияет множество факторов, в том числе и перезарядка ПС. Путем отжига пленки можно осуществлять перезарядку ПС и тем самым повлиять на распределение вкладов отдельных механизмов рекомбинации на релаксацию малосигнальной фотопроводимости [4, 7].

Нами экспериментально исследована фотопроводимость в сильновозбужденных пленках PbS, изготовленных методом химического осаждения. Толщина

пленок $d \approx 0.2$ мкм. Материалом подложки был выбран поликристаллизованный ситалл. С помощью электронной микроскопии были определены средние размеры кристаллитов $L \approx 0.11$ мкм. Измерения проводились со свежесажденными (пленка 1) и до разных температур отожженными пленками: $T_{отж} = 400$ (пленка 2), 440 (пленка 3), 455 К (пленка 4). Термический отжиг проводился в вакууме с постоянной скоростью нагрева 20 К/мин. Степень отжига исследованных пленок выбиралась по характерным точкам зависимости $\sigma = f(T_{отж})$ (рис. 1). Стрелкой на рисунке отмечена область инверсии типа электропроводности из p -типа в n -тип. Образцы имели компланарную геометрию контактов, обеспечивающую согласование с 50-омной микрополосковой линией. Они помещались в гигагерцовый коаксиальный тракт, находящийся в азотном криостате. С помощью пикосекундного лазера (длительность одиночного импульса $\tau_L \approx 17$ пс; длина волны излучения $\lambda = 1.08$ мкм) в пленках возбуждалась электрон-дырочная плазма. С осциллографом непосредственно снимались кинетики фотопроводимости. Из анализа кинетик фотопроводимости были определены мгновенные времена релаксации фотопроводимости (τ_m). Энергия падающего на образец

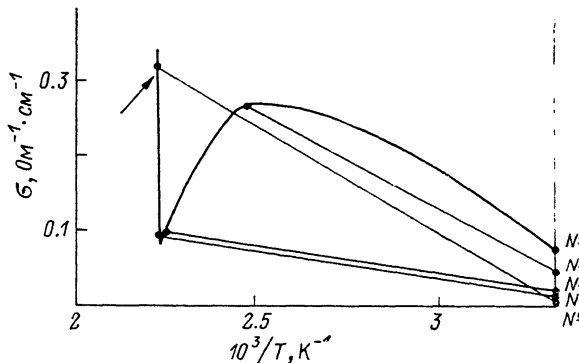


Рис. 1. Зависимость проводимости пленок PbS от температуры термоотжига.

лазерного луча \mathcal{E} измерялась калориметром. Расчеты $\Delta\sigma$ и ΔN производились по формулам $\Delta\sigma = \Delta U / R_A d V_b$; где d — толщина образца; V_b — постоянное напряжение на образце; ΔU — напряжение на нагрузочном сопротивлении $R_A = 50$ Ом; $\Delta N = \eta (1-R) [1 - \exp(-ad)] \mathcal{E} / h\nu l^2 d$, где η — квантовый выход; R — коэффициент отражения; α — коэффициент поглощения; \mathcal{E} — энергия возбуждения образца; $h\nu$ — энергия кванта облучения; l^2 — площадь облучения образца. Используя вычисленные и определенные величины $\Delta\sigma$, ΔN , и τ_m , построили зависимости $\Delta\sigma = f(\Delta N)$ (рис. 2) и $\tau_m = f(\Delta N)$ (рис. 3 и 4).

Измерения фотопроводимости проводились в квазистационарном режиме ($\tau_m > t_0$, t_0 — временная разрешающая способность регистрирующей аппаратуры). Такой режим дает возможность непосредственно из зависимости $\Delta\sigma = f(\Delta N)$ оценить подвижность носителей заряда. Получено, что в свежесажденных и отожженных до температуры $T_{отж} = 442$ К пленках (1–3) при комнатной температуре в интервале концентраций ННЗ $\Delta N \sim 10^{16} - 3 \cdot 10^{19}$ см $^{-3}$ значение подвижности постоянно и равно $\mu \approx 13$ см 2 /В·с (рис. 1, кривая 1). Низкие значения подвижности нельзя объяснить влиянием потенциальных барьеров, так как при больших концентрациях они экранированы. Целесообразно проанализировать подвижность носителей заряда в обобщенной форме [8]: $\mu^{-1} = \mu_k^{-1} + \mu_Q^{-1} + \mu_\alpha^{-1}$, где μ_k — подвижность носителей в объеме кристаллита; μ_Q — подвижность, определяемая рассеиванием носителей потенциальными барьерами; μ_α — подвижность носителей, определяемая рассеиванием межкристаллитными прослойками и нейтральными дефектами на поверхностях кристаллитов. Так как в сильновозбужденной пленке барьеры экранированы, величина μ_Q^{-1} не существенна и вышеуказанная формула упрощается в $\mu^{-1} = \mu_k^{-1} + \mu_\alpha^{-1}$. Отсюда следует пояснение низких значений подвижности носителей заряда при больших уровнях возбуждения. Так как $\mu_\alpha \gg \mu_k$, подвижность носителей будет определяться рассеянием носителей на межкристаллитных прослойках и нейтральных дефектах. О существовании в пленках PbS диэлек-

трических прослоек, образованных соединениями типа $PbSO_4$ и $PbO \cdot PbSO_4$ (диэлектрическая проницаемость $\epsilon \approx 4$), говорится в работе [4]. Так как ширина запрещенной зоны прослоек больше, чем в кристаллитах, носители должны преодолевать барьер туннелированием, что сильно снижает их подвижность. Для сильноотожженной пленки (рис. 2, кривая 2) при $T=300$ К и концентрациях NH_3 выше $\Delta N \sim 3 \cdot 10^{18}$ $см^{-3}$ проявляется сверхлинейность в зависимости $\Delta \sigma = f(\Delta N)$. Сверхлинейность обнаружена также в свеженапыленных и слабоотожженных пленках. Только там она начинается с более высоких концентраций NH_3 [$\Delta N = (3 \div 4) \cdot 10^{19}$ $см^{-3}$]. Следует отметить, что как при комнатной температуре, так и при температуре $T=138$ К, для всех типов пленок

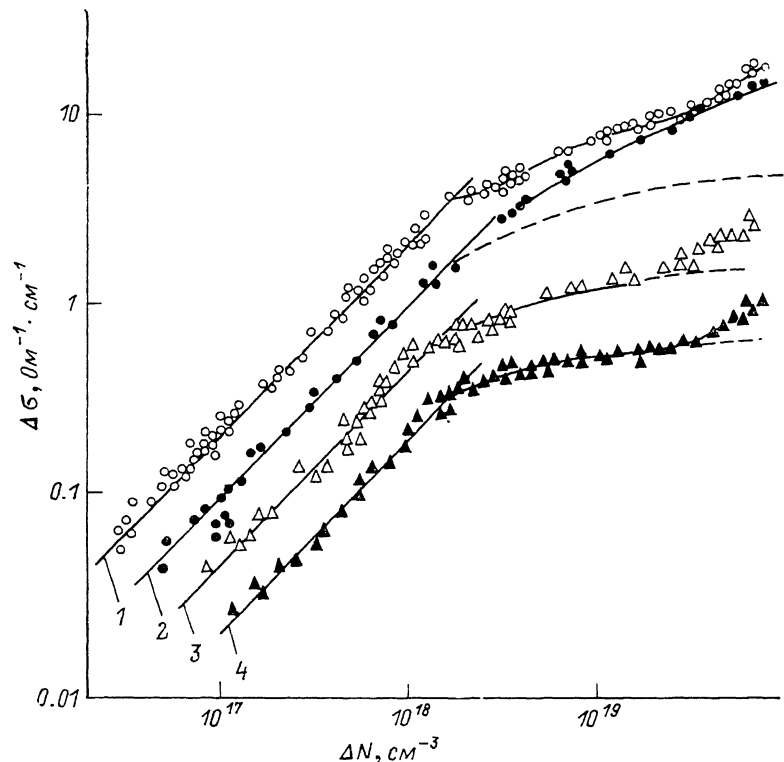


Рис. 2. Зависимость фотопроводимости пленок PbS от концентрации фотовозбужденных носителей заряда.

Свежеосажденные и слабоотожженные (1, 3) и сильноотожженные (2, 4). Температура измерения, К: 1, 2 — 300, 3, 4 — 138.

обнаружено аналогичное увеличение $\Delta \sigma$. В этом случае оно начинается для всех исследованных пленок с одинаковой концентрацией NH_3 $\Delta N \approx 3 \cdot 10^{19}$ $см^{-3}$. Причиной появления сверхлинейности в зависимости $\Delta \sigma = f(\Delta N)$ следует считать нагрев пленки. Сравнительно большая ($h\nu > E_p$) энергия возбуждаемого кванта по сравнению с запрещенной энергетической зоной PbS , а также явное доминирование ударной рекомбинации являются достаточным основанием сильной генерации фононов.

В экспериментах была исследована активация подвижности носителей заряда в пленках PbS . С этой целью измерения проводились в интервале температур от комнатной до $T=138$ К. При снижении температуры до $T=138$ К подвижность уменьшилась соответственно в 4.5 раза во всех типах пленок: до $\mu \approx 3$ $см^2/V \cdot с$ в свеженапыленных и слабоотожженных (рис. 2, кривая 3) и до $\mu \approx 1$ $см^2/V \cdot с$ в сильноотожженных (рис. 2, кривая 4). Одинаковое температурное поведение подвижности указывает на один, характерный для всех типов пленки, фактор. По нашему мнению, это связано с температурной зависимостью вероятности туннелирования носителей кристаллитных прослоек.

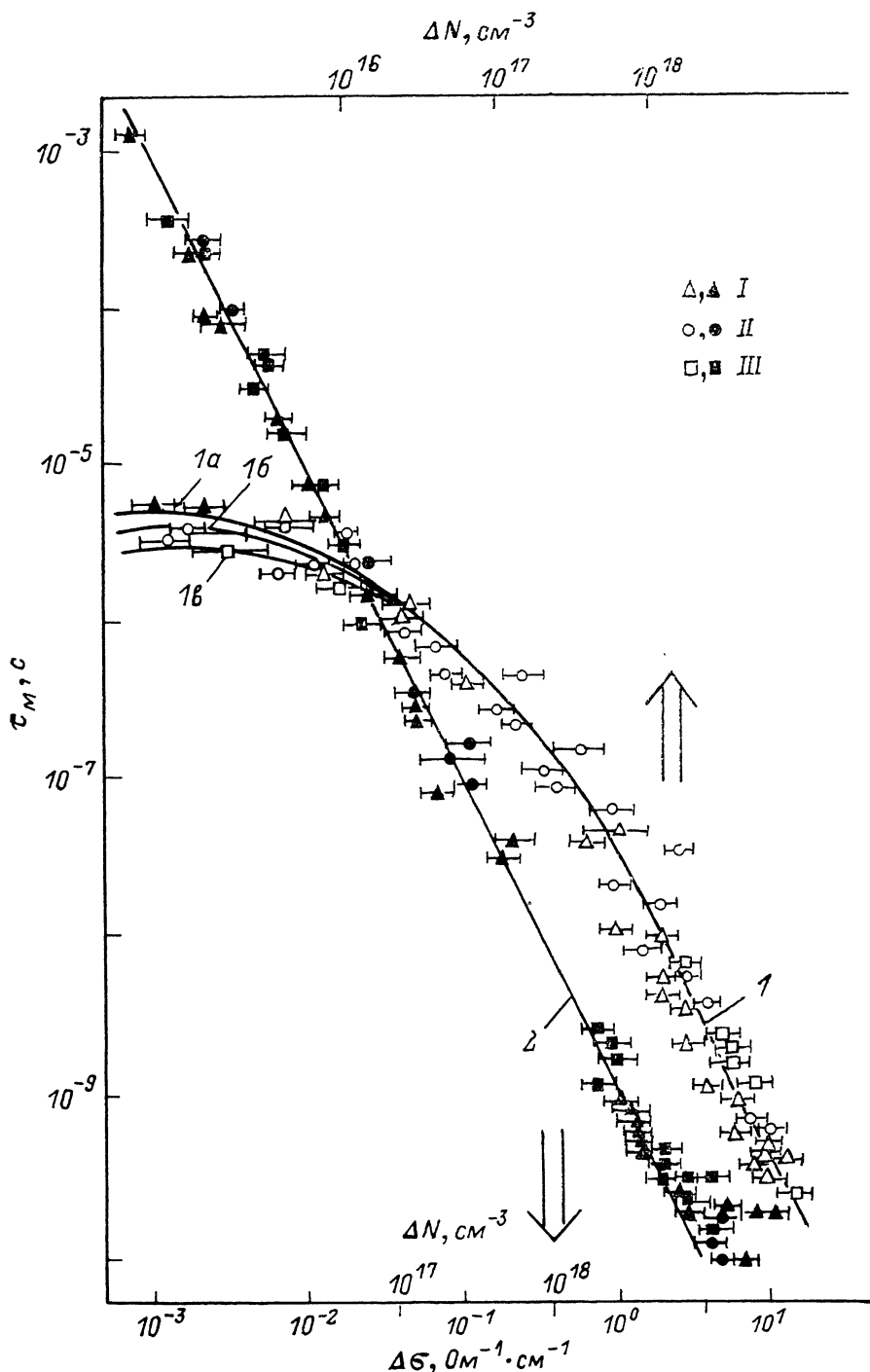


Рис. 3. Зависимость мгновенного времени релаксации фотопроводимости от концентрации фотовозбужденных носителей заряда.

Температура измерения, К: 1 — 300, 2 — 138. I — свежесажденные, II — отожженные до $T_{отж} = 400$ К°
 III — $T_{отж} = 442$ К. Сплошные линии — теоретические кривые.

Измерения рекомбинации ННЗ проведены в диапазоне концентраций $\Delta N \sim 10^{15} - 10^{19} \text{ см}^{-3}$. Результаты исследований при температуре $T=300 \text{ К}$ в свеженанпыленных и отожженных пленках (рис. 3, кривая 1; рис. 4, кривая 1) показали сложную зависимость мгновенного времени от концентрации носителей заряда. Как отмечалось выше, при малых концентрациях ННЗ ($\Delta N \leq 5 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$) релаксацию определяют три основных механизма рекомбинации

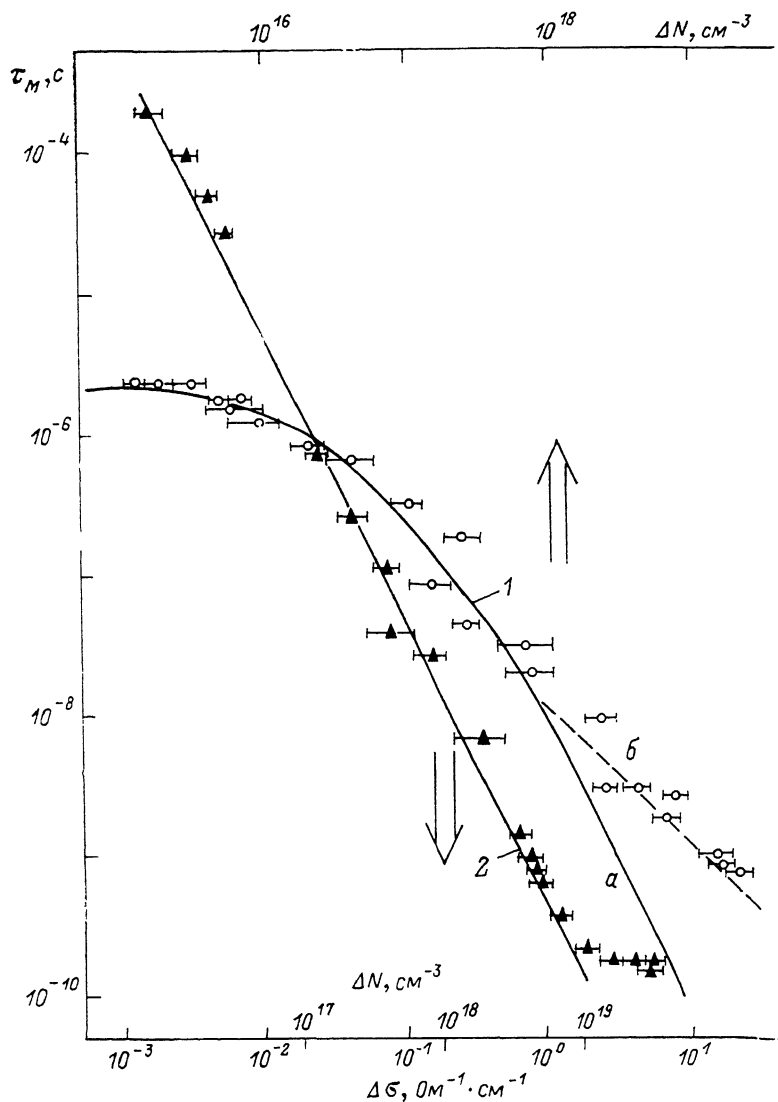


Рис. 4. Зависимость мгновенного времени релаксации фотопроводимости от концентрации ННЗ в сильноотожженных пленках PbS.

Температура измерения, К: 1 — 300, 2 — 138. Сплошные линии — теоретические кривые.

носителей заряда: ударная, излучательная и рекомбинация через ПС. Для выявления определяющего механизма рекомбинации ННЗ были сделаны теоретические оценки (кривые показаны сплошными линиями на рис. 3 и 4). Хорошее соответствие теоретических кривых с экспериментальными точками получено подбором значений коэффициентов, равных $\gamma_R + \gamma_L N_S = 2.2 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3/\text{с}$ и $\gamma_A = 5.3 \cdot 10^{-29} \text{ см}^6/\text{с}$ (γ_R , γ_L , γ_A — коэффициенты излучательной, ударной через примесные уровни и межзонной ударной рекомбинаций, N_S — концентрация поверхностных уровней).

Как уже отмечалось, в пленках PbS при комнатной температуре и больших концентрациях ННЗ ($\Delta N \geq 10^{18} \text{ см}^{-3}$) доминирующей является ударная рекомбинация. Измеренный нами во всех исследованных пленках PbS (свежеосажденных и отожженных) коэффициент ударной рекомбинации равен $5.3 \times 10^{-29} \text{ см}^6/\text{с}$. Для получения более всесторонней картины релаксации концентрации носителей в пленках были проведены исследования температурной активации процессов рекомбинации ННЗ. Известно, что снижение температуры уменьшает концентрацию равновесных носителей заряда. Как показал наш анализ, малосигнальную фотопроводимость при комнатной температуре определяют равновесные носители заряда. Поэтому при понижении температуры их влияние на релаксацию ННЗ должно снизиться или исчезнуть. Экспериментальные результаты это подтверждают. При температуре $T=138 \text{ К}$ зависимость $\tau_n=f(\Delta N)$ является прямой (рис. 3, кривая 2; рис. 4, кривая 2) во всем измеренном диапазоне концентраций ННЗ ($\Delta N=10^{16} \div 10^{19} \text{ см}^{-3}$). Следовательно, релаксацию носителей определяет только ударная рекомбинация с коэффициентом $\gamma_d=5.3 \cdot 10^{-29} \text{ см}^6/\text{с}$. Отсюда следует вывод, что основной механизм рекомбинации в пленках PbS при больших концентрациях ННЗ ($\Delta N > 10^{18} \text{ см}^{-3}$) в интервале температур $T=138 \div 300 \text{ К}$ не активируется, т. е. тип и коэффициент рекомбинации не меняются.

Список литературы

- [1] Petritz R. L. // Phys. Rev. 1956. V. 104. P. 1508.
- [2] Giroux G. // Canad. J. Phys. 1963. V. 41. P. 1840—1867.
- [3] Казмерски Л. Тонкие поликристаллические и аморфные пленки. М., 1983. 304 с.
- [4] Неустроев Л. Н., Осипов В. В. // ФТП. 1986. Т. 20. В. 1. С. 59—65.
- [5] Naugh A. // J. Phys. C: Sol. St. Phys. 1988. V. 21. P. L287—L290.
- [6] Барышев Н. С., Штивельман К. Я. // ФТП. 1967. Т. 1. В. 2. С. 172—177.
- [7] Неустроев Л. Н., Осипов В. В. // ФТП. 1986. Т. 20. В. 1. С. 66—72.
- [8] Takhashi M., Uosaki K., Kita H., Iamaguchi S. // J. Appl. Phys. 1986. V. 60. N 6. P. 2046—2049.

Вильнюсский университет

Получена 31.01.1990
Принята к печати 19.02.1991