

Проводимость твердых растворов $Pb_{1-x}Sn_xTe(In)$ в переменном электрическом поле

© А.Е. Кожанов, А.В. Никорич*, Л.И. Рябова[†], Д.Р. Хохлов^{††}

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119992 Москва, Россия

* Институт прикладной физики Академии наук Молдавии,
MD-2028 Кишинев, Молдавия

(Получена 24 января 2006 г. Принята к печати 31 января 2006 г.)

Исследованы частотные и температурные зависимости компонент полного импеданса монокристаллов $Pb_{0.75}Sn_{0.25}Te(In)$ в частотном диапазоне от 20 до 10^6 Гц в температурном интервале $T = 4.2-300$ К. Анализ импеданс-спектров проведен в рамках модели эквивалентных схем. Показано, что при $T = 4.2$ К импеданс-спектр образца соответствует эквивалентной схеме параллельного RC -контура. Рассчитанные параметры контура соответствуют значению диэлектрической проницаемости материала $\epsilon \approx 1000$ при низких температурах. Повышение концентрации свободных носителей заряда, индуцированное либо нагревом образца, либо подсветкой, осуществляемой при температурах ниже $T_c \approx 25$ К, приводит к существенному возрастанию емкостного вклада в проводимость. Показано, что увеличение этого вклада не может быть связано с фазовым переходом. Рассматривается возможность увеличения емкостного вклада в связи с процессами перезарядки в примесной подсистеме, индуцированными переменным электрическим полем.

PACS: 6470.Kb, 72.20.Ht, 77.80.Bh

1. Введение

Индий в твердых растворах на основе $PbTe-SnTe$ характеризуется переменной валентностью и формирует систему примесных уровней, расположенных как внутри запрещенной зоны, так и на фоне разрешенных состояний зоны проводимости [1]. Стабилизация положения уровня Ферми и долговременные релаксационные процессы, наблюдающиеся при температурах T ниже $T_c \approx 25$ К, определяют пространственную однородность электрофизических параметров и высокую фоточувствительность образцов. Задержанная фотопроводимость обусловлена эффектом накопления неравновесных носителей заряда в разрешенной зоне с характерным временем жизни, достигающим 10^5 с. Варьируя соотношение свинца и олова в металлической подрешетке твердых растворов, можно направленно изменять положение стабилизированного уровня Ферми и область спектральной чувствительности. В монокристаллических образцах $Pb_{0.75}Sn_{0.25}Te(In)$ фотоотклик наблюдается вплоть до длин волн ~ 240 мкм [2]. С точки зрения создания нетепловых фотоприемников, чувствительных в субмиллиметровой области спектра, данный материал не имеет аналогов.

Учитывая большие времена жизни неравновесных носителей заряда, особенное значение приобретает проблема быстрого сброса сигнала остаточной фотопроводимости. Кроме очевидного, но медленного способа возвратить образец в равновесное темновое состояние с помощью нагрева, был разработан метод гашения сигнала импульсом сверхвысокой частоты (СВЧ) [3]. Несмотря на то что технически процесс гашения отработан, физические принципы, отвечающие за его механизм,

не вполне понятны. СВЧ импульс, поданный на контакты образца, может приводить не только к гашению задержанной фотопроводимости, но и в определенных условиях стимулировать увеличение квантовой эффективности [4]. Эти данные свидетельствуют о нетривиальном поведении образцов в переменных электрических полях. Недостающим звеном в исследовании этих материалов является отсутствие систематических исследований электрофизических характеристик твердых растворов в области более низких частот. Для построения целостной картины, отражающей влияние переменных электрических полей на поведение примесной подсистемы в условиях теплового равновесия и при фотовозбуждении неравновесных носителей, в данной работе предпринято исследование электрофизических характеристик твердого раствора $Pb_{0.75}Sn_{0.25}Te(In)$ в электрических полях с частотой до 1 МГц.

2. Исследованные образцы и методика измерений

Монокристаллические образцы $Pb_{0.75}Sn_{0.25}Te(In)$ имели форму прямоугольных пластин размером $0.004 \times 0.03 \times 0.04$ см (образец 1) и $0.25 \times 0.25 \times 0.09$ см (образец 2). В меньшем образце 1 ранее было обнаружено и исследовано гашение задержанной фотопроводимости СВЧ импульсом [2]. Контакты для этого образца располагались на торцевых поверхностях 0.004×0.03 см. Второй образец имел форму, в большей степени подходящую для измерения емкости (индиевые контакты наносились на грани большей площади), и являлся своего рода репером. Измерения были также выполнены для серии образцов, близких по размерам к образцам 1 и 2. Все полученные данные, приводимые в данной работе, являются хорошо воспроизводимыми.

[†] E-mail: mila@mig.phys.msu.ru

^{††} E-mail: khohlov@mig.phys.msu.ru

Измерения проводились в камере, полностью экранирующей образец от фоновых излучений. Для подсветки использовалась миниатюрная лампа накаливания. Исследование частотных зависимостей компонент полного импеданса осуществлялось LCR -измерителем „Quad Tech 1920“ в диапазоне частот от 10^3 до 10^6 Гц с шагом по частоте 10^3 Гц в области частот до 10^5 Гц и с шагом 10^4 Гц — вплоть до 10^6 Гц при температурах от 4.2 до 300 К. Реальный диапазон достоверных измерений прибора был определен экспериментально с использованием в качестве реперов стандартных наборов сопротивлений и конденсаторов. В качестве измеряемых сигналов регистрировались модуль импеданса и фаза, которые пересчитывались в активную Z' и реактивную Z'' компоненты полного импеданса $Z^* = Z' - jZ''$.

3. Результаты измерений

Особенностью исследованных кристаллов является то, что в рассматриваемом диапазоне температур их проводимость изменяется более чем на 7 порядков величины. Поэтому получить достоверные частотные зависимости компонент полного импеданса можно было только в условиях строго фиксированной температуры. Импеданс-спектр оказался достаточно информативным лишь при температуре жидкого гелия, когда сопротивление образца было максимальным. На рис. 1 представлена зависимость $Z''(Z')$ (годограф импеданса) для образца 1 при $T = 4.2$ К. Импеданс-спектр представляет собой единичную полуокружность, что, согласно представлениям модели эквивалентных схем [5], соответствует параллельной RC -цепочке (вставка на рис. 1). Сплошная кривая, показанная на рисунке, представляет расчет с параметрами $R_p = 1.1$ МОм, $C_p = 2.2$ пФ. Аналогичный

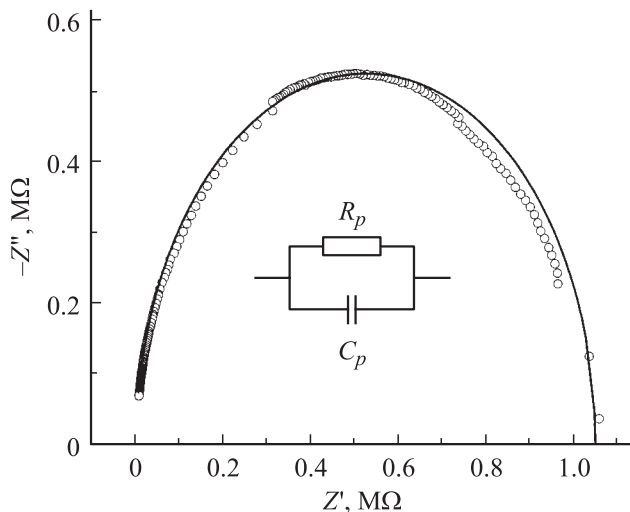


Рис. 1. Импеданс-спектр, полученный при температуре $T = 4.2$ К для образца 1 твердого раствора $Pb_{0.75}Sn_{0.25}Te(In)$. Сплошная кривая — расчет при $R_p = 1.1$ МОм, $C_p = 2.2$ пФ. На вставке — эквивалентная схема, соответствующая данному спектру.

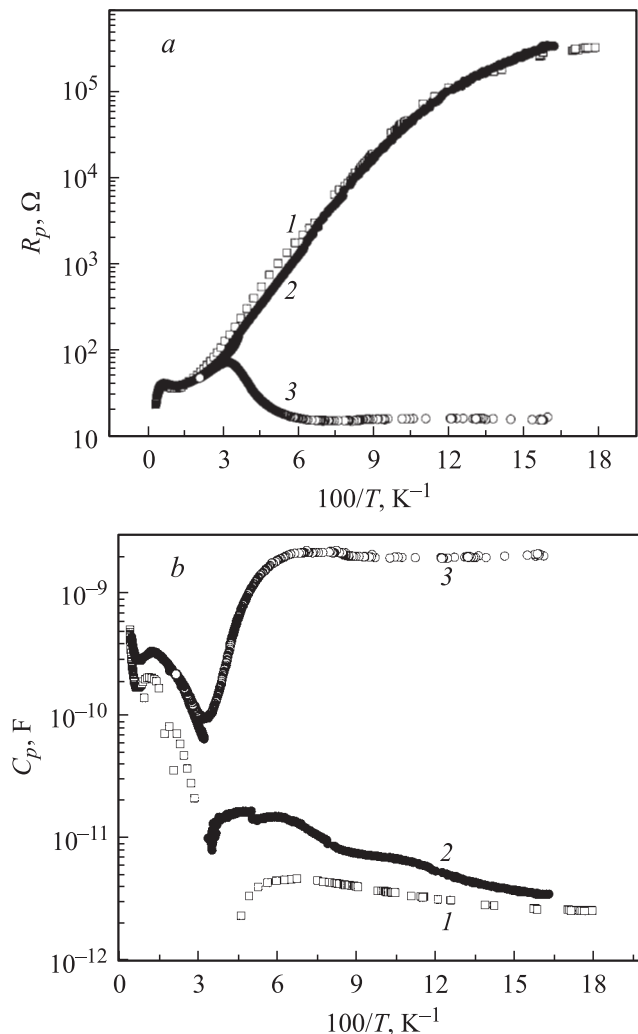


Рис. 2. Температурные зависимости сопротивления R_p (a) и емкости C_p (b) от температуры для образца 1 твердого раствора $Pb_{0.75}Sn_{0.25}Te(In)$, полученные на частотах 1 МГц (1) и 50 кГц (2, 3). Зависимости 1, 2 измерены в условиях экранирования, 3 — в условиях подсветки тепловым источником излучения.

импеданс-спектр был получен и для второго образца, причем изменение параметров эквивалентной схемы было в хорошем соответствии с размерным фактором.

Температурные зависимости модуля импеданса и фазы были измерены при частотах 10^3 , $5 \cdot 10^3$, 10^4 , $5 \cdot 10^4$ и 10^6 Гц. Анализ полученных данных проводился в предположении, что приведенная выше простая эквивалентная схема может быть использована во всем диапазоне температур, если фаза сигнала соответствует режиму опережения тока. В этом случае параметры RC -контура определяются соотношениями

$$R_p = Z' \left[1 + \left(\frac{Z''}{Z'} \right)^2 \right], \quad C_p = \frac{Z''}{\omega R_p Z'}$$

На рис. 2, a приведены температуры зависимости R_p , полученные на частотах $5 \cdot 10^4$ и 10^6 Гц. Зависимо-

сти $R_p(T)$ практически совпадают с температурной зависимостью сопротивления, измеренной в статическом режиме (на рисунке не приведена), и с зависимостью $Z'(T)$. Расхождение кривых $Z'(T)$ и $R_p(T)$ наблюдаются лишь при $T < 15$ К и максимальной частоте опорного сигнала 10^6 Гц.

Существенно более сложным образом ведут себя температурные зависимости емкости C_p (рис. 2, б). При температурах ниже 20 К значение C_p изменяется слабо, а при высоких частотах является практически постоянным. Оценка величины диэлектрической проницаемости с использованием формулы для емкости плоского конденсатора дает значение $\epsilon \approx 1000$, что является вполне разумным для твердых растворов на основе теллурида свинца [6]. Повышение температуры приводит к росту концентрации свободных носителей заряда и уменьшению сопротивления образца. Как показали методические измерения реперных схем со стандартными наборами конденсаторов и сопротивлений, измерение емкостей порядка единиц пикофард возможно лишь в том случае, если сопротивление утечки выше 10^3 Ом. В условиях роста проводимости образца измерение емкостей порядка единиц пикофард становится недоступным, фаза сигнала меняет знак, что соответствует проявлению индуктивного вклада. На рис. 2, б эта область соответствует уменьшению емкости, и так как данные представлены в логарифмическом масштабе, зависимость $\lg C_p = f(100/T)$ имеет разрыв, отвечающий смене знака фазы при $T \approx 20-25$ К. Дальнейший рост температуры приводит к повторному изменению знака фазы сигнала, отвечающему возрастанию емкости образца. Аналогичная тенденция роста емкости наблюдается и при подсветке при низких температурах (см. рис. 2, б, кривая 3). Важно, что в разных образцах значения параметра $\tau = R_p C_p = \epsilon \rho$ (ρ — удельное сопротивление) совпадают только в области низких температур. В области высоких температур разница в значениях τ для образцов 1 и 2 превышает порядок величины. При $T > 50$ К для образца 1 $\tau \approx 10^{-8}$ с, а для образца 2 — $\tau \approx 3 \cdot 10^{-7}$ с. Указанные значения остаются практически постоянными вплоть до температуры $T \approx 300$ К. Это указывает на то, что при повышении концентрации носителей заряда формально рассчитанную емкость C_p нельзя ассоциировать с емкостью плоского конденсатора и рассчитывать значение статической диэлектрической проницаемости решетки, пользуясь соответствующей формулой.

4. Обсуждение результатов

Эффект резкого возрастания емкости при повышении температуры и в условиях подсветки ранее был обнаружен в работе [7] при исследовании пленок $Pb_{1-x}Sn_xTe(In)$, изготовленных в виде встречно-штырьевых структур. Измерения проводились на частоте $3.3 \cdot 10^3$ Гц. Авторы объяснили это явление переходом решетки в сегнетофазу при температуре $T \approx 20$ К. Однако остается непонятным, какому состоянию образца соответствует предполагаемая сегнетофаза. Фазовый

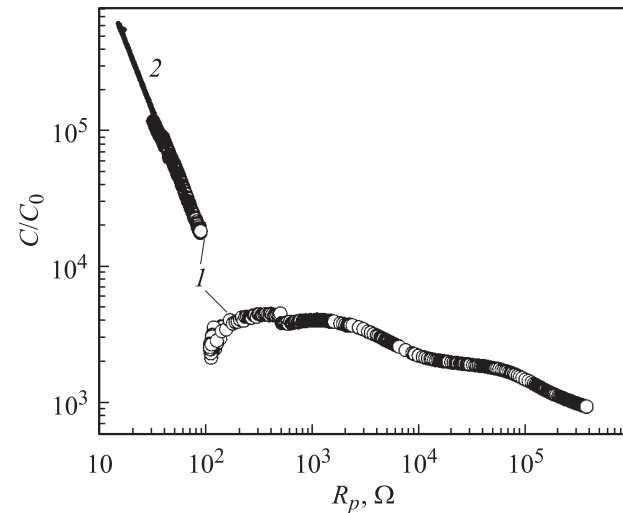


Рис. 3. Типичный вид зависимостей приведенной емкости C_p/C_0 от сопротивления R_p образцов $Pb_{0.75}Sn_{0.25}Te(In)$. Зависимость 1 получена в темноте, 2 — при подсветке.

переход из кубической в сегнетоэлектрическую фазу наблюдается в $Pb_{1-x}Sn_xTe$ с большим ($x > 0.40$) содержанием теллурида олова при понижении температуры. В $SnTe$, где фазовый переход изучен достаточно подробно, повышение концентрации носителей заряда приводит к понижению температуры фазового перехода. Однако экспериментально определенная диэлектрическая проницаемость $Pb_{1-x}Sn_xTe(In)$ близка по величине к диэлектрической проницаемости нелегированных сплавов в кубической фазе именно в области низких температур. Таким образом, чтобы объяснить возрастание емкостного вклада в проводимость в рамках концепции сегнетоэлектрического фазового перехода нужно предположить, что кубическая фаза существует при низких температурах и малых концентрациях, а сегнетофаза с аномально большой диэлектрической проницаемостью наблюдается в области высоких температур. Подобное предположение находится в полном противоречии с результатами исследований нелегированных сплавов. Более того, в образцах $Pb_{1-x}Ge_xTe(Ga)$, где фазовый переход действительно имеет место, диэлектрическая проницаемость имеет резкий пик лишь в узкой области температур вблизи фазового перехода при $T = T_0$. При $T > T_0$ и при $T < T_0$ значения ϵ остаются близкими к 1000 [8]. В связи с этим, анализируя температурные зависимости емкости, видимо, не следует делать вывод о резком возрастании диэлектрической проницаемости решетки, можно лишь констатировать увеличение емкостного вклада в проводимость.

Для установления механизма, ответственного за возрастание емкостного вклада в проводимость, рассмотрим представленные на рис. 3 зависимости приведенной емкости C_p/C_0 (C_0 — геометрическая емкость образца, равная отношению площади контактных пластин к расстоянию между ними) от сопротивления R_p для образца 1. Кривая 1 получена в темновых условиях

при изменении температуры образца, кривая 2 — в условиях подсветки при фиксированной температуре $T = 4.2$ К. Из приведенных данных следует, что зависимости $C_p(R_p)$ практически совпадают независимо от того, каким внешним воздействием индуцировано изменение сопротивления: посредством нагрева образца или подсветкой. По всей вероятности, резкое возрастание емкости обусловлено наличием свободных носителей заряда, индуцированных либо термической активацией с примесного уровня, либо посредством фотовозбуждения. Для исследования возможного влияния подвижности на величину емкостного вклада в проводимость были проведены измерения импеданс-спектров в магнитных полях до 4 Тл при $T = 4.2$ К. Анализ полученных данных показал, что изменение сопротивления, связанное с уменьшением подвижности носителей в магнитном поле, не влияет на определенную из годографа величину C_p .

5. Заключение

Таким образом, можно сделать вывод, что увеличение емкостного вклада в проводимость обусловлено исключительно ростом концентрации свободных носителей заряда. Поскольку генерация носителей заряда происходит с примесного уровня, в образце появляются дополнительные заряженные примесные центры. Переменное электрическое поле возбуждает процесс перезарядки этих центров, что может приводить к возрастанию емкостного вклада в сопротивление образца. Аналогичные процессы наблюдались ранее в гетеропереходах Ge–Si [9]. Пока трудно предложить микроскопическую модель, описывающую эти процессы. Однако можно полагать, что это достаточно быстрый процесс, характерные времена которого сравнимы с величиной τ . Не исключено, что это именно тот тип процессов, которые приводят к гашению задержанной фотопроводимости СВЧ импульсом.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта РФФИ № 05-02-16657.

Список литературы

- [1] Б.А. Волков, Л.И. Рябова, Д.Р. Хохлов. УФН, **172**, 875 (2002).
- [2] Б.А. Акимов, Н.Б. Брандт, Л.И. Рябова, Д.Р. Хохлов. Вестн. МГУ. Сер. 3, Физика, астрономия, № 1, 59 (2005).
- [3] Б.А. Акимов, Н.Б. Брандт, Д.Р. Хохлов, С.Н. Чесноков. Письма ЖТФ, **14**, 731 (1988).
- [4] В.А. Akimov, D.R. Khokhlov. Semicond. Sci. Technol., **8**, S349 (1993).
- [5] А.К. Иванов-Шиц, И.В. Мурин. *Ионика твердого тела* (СПб., Изд-во Санкт-Петербургского ун-та, 2000) т. 1.
- [6] В.И. Кайданов, Ю.И. Равич. УФН, **145**, 51 (1985).
- [7] А.Э. Климов, В.Н. Шумский. Прикл. физика, № 3, 74 (2004).
- [8] Б.А. Акимов, В.В. Прядун, Л.И. Рябова, Е.И. Слынько, Д.Р. Хохлов, В.И. Штанов. ФНТ, **30**, 1209 (2004).

- [9] J.P. Donnelly, A.G. Milnes. IEEE Trans. Electron. Dev. **ED-14**, 63 (1967).

Редактор Т.А. Полянская

Conductivity of $Pb_{1-x}Sn_xTe(In)$ solid solution in alternative electric field

A.E. Kozhanov, A.V. Nikorich*, L.I. Ryabova, D.R. Khokhlov

M.V. Lomonosov Moscow State University, 119992 Moscow, Russia

* The Institute of Applied Physics, Moldavian Academy of Sciences, MD-2028 Kishinev, Moldavia

Abstract Frequency and temperature dependences of the impedance components have been studied for single crystals of the $Pb_{0.75}Sn_{0.25}Te(In)$ solid solution in the frequency range of $20-10^6$ Hz at the temperatures 4.2–300 K. The impedance spectra were analyzed in terms of the equivalent circuit model. The impedance spectrum is represented by a semicircle at the liquid helium temperature, but this may be related to the RC circuit that has been connected in parallel. The calculated parameters of this circuit corresponds to the permittivity values of about 1000 at low temperatures. It is not incounceivable that the increase in the charge carrier concentration induced by sample heating or illumination at temperatures lower than $T = T_c \approx 25$ K results in a significant rise in the capacitive contribution to the conductivity. The experimental data are analyzed from the point of view of a possible phase transition. It is shown that this concept gives unsatisfactory explanation of the results obtained. The increase of the capacitive contribution to the conductivity is being discussed in the context of the impurity subsystem charge exchange processes induced by an alternative electric field.