

УДК 535.34

Р. Пастернак, канд. фіз.-мат. наук; М. Пастернак, канд. техн. наук

Луцький національний технічний університет

ВПЛИВ ПОПЕРЕДНІХ ЕЛЕКТРИЧНИХ НАВАНТАЖЕНЬ ЗРАЗКІВ PbI_2 НА ХАРАКТЕР ХОДУ ВАХ

У роботі подано результати дослідження впливу приконтактних явищ на протікання інжекційних струмів у зразках дийодиду свинцю. Знайдено аналітичний розв'язок для ключових параметрів ВАХ при наявності об'ємних зарядів. Проаналізовано наслідки попередніх електричних навантажень зразків на результати експерименту. Встановлено температурну залежність рухливості дірок.

Ключові слова: дийодид свинцю, дифузійний струм, деполяризація, ВАХ.

R. Pasternak, M. Pasternak

THE INFLUENCE OF PREVIOUS ELECTRIC LOADS ON PbI_2 SAMPLES VAC

This work presents the results of near-contact phenomena research at flow of injection currents in lead iodide samples. The influence of a sample prehistory on the results of experiment and temperature dependence of current components is analysed. Analytic formula for key parameters of injection process is obtained.

Key words: lead iodide, diffusion current, depolarization, VAC.

Великі масові числа атомів та значні міжшарові відстані у кристалах дийодиду свинцю роблять цей матеріал стійким до утворення дефектів при опроміненні великими дозами радіації, що значно посилює інтерес до його практичного використання [1,2]. Незважаючи на інтенсивні дослідження, електричні властивості PbI_2 вивчені недостатньо [2,3]. Причин тут багато, зокрема варіабельність характеристик матеріалу внаслідок впливу політипних перетворень, контактних явищ та перенесених електричних, термічних, механічних чи оптичних навантажень. У [4] подано результати досліджень термічного гістерезису провідності монокристалів PbI_2 . У пропонуваній роботі основну увагу приділено вивченню впливу електричних навантажень зразків дийодиду свинцю з інжекційними електродами на характер ходу ВАХ.

Особливості матеріалу та процесу зняття ВАХ. У високоомних монокристалах PbI_2 в діапазоні температур 280-400 К основними носіями струму є дірки та іони йоду, рухливості яких відрізняються на декілька порядків [4]. За наявності інжекційних електродів резервуарного типу [2], значних дифузійних струмів у приконтактних областях, утворення приконтактного подвійного зарядженого шару різні умови збудження зумовлюють встановлення одного з двох стабільних режимів. Так, при повільному зростанні напруги на зразку (зі швидкістю 0,02 В/хв.) спостерігається практично лінійна ВАХ [3], а при подачі імпульсів напруги – суто нелінійна [4]. Розрахунки та експерименти показують, що для кристалів PbI_2 явно виділяти струми монополярної інжекції можна лише в діапазоні температур 430-480 К, де діркові та іонні струми конкурують за величиною. При температурах, нижчих від 410 К (аж до 280 К), основними є іонні струми, а при $T > 480$ К – діркові, тому за межами цього діапазону складно спостерігати процес перерозподілу струму між різними типами носіїв.

У [5] подано залежність густини дифузійного струму J_{diff} в однорідних зразках PbI_2 від густини струму j :

$$j_{diff} = \frac{kTj}{\varepsilon\varepsilon_0 eE^2} \left(\frac{j}{\mu E(x)} - en_0 \right). \quad (1)$$

Тут k – стала Больцмана; T – абсолютна температура зразка; μ – рухливість дірок; n_0 – рівноважна концентрація дірок; ε – діелектрична проникність матеріалу; ε_0 – електрична стала; e – елементарний заряд; $E(x)$ – розподіл напруженості електричного поля вздовж зразка, що задається виразом:

$$E(x) = \frac{j}{en_0\mu} \left\{ 1 + LW \left(-\exp \left(-1 - \frac{e^2 n_0^2 \mu}{\varepsilon\varepsilon_0 j} x \right) \right) \right\}. \quad (2)$$

У формулі (2) LW – W -функція Ламберта.

На рис. 1 зображено розрахований відповідно до (1) хід відносної частки дифузійного струму в загальному струмі через зразок (за умов експерименту), де x – відстань від інжекційного контакту. Видно, що при товщині зразка, меншій від 0,1 мм, дифузійні струми є значними в усьому об'ємі. На рис. 2 зображено розподіл напруженості електричного поля по товщині однорідного зразка при наявності в ньому об'ємних зарядів. Видно, що вплив останніх поширюється лише на відстань до 1 мм від інжекційного контакту.

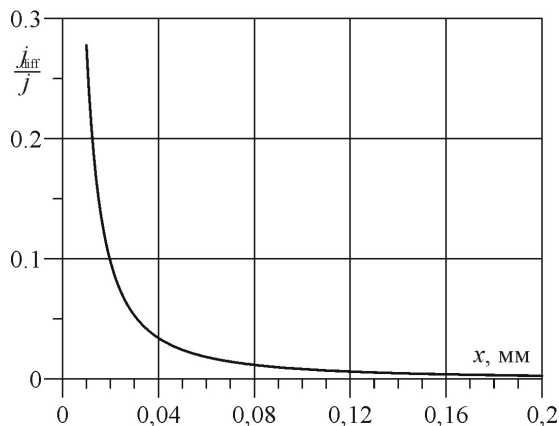


Рисунок 1 - Частка дифузійного струму у загальному струмі через зразок

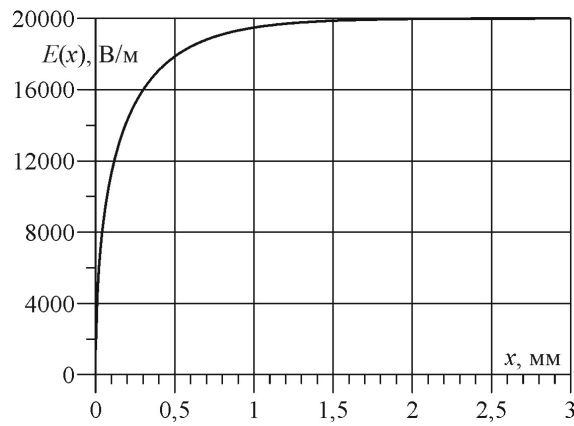


Рисунок 2 - Розподіл напруженості електричного поля по товщині зразка

Унаслідок інжекції носіїв відбувається перерозподіл їхньої густини в об'ємі зразка. При стрибку напруги від U_1 до U_2 , відповідно до другого закону Фіка, струм $I(t)$ повинен змінюватися з часом t таким чином [6]:

$$I(t) = \frac{L}{\sqrt{\pi Dt}} [I_{вст}(U_2) - I_{вст}(U_1)] + I_{вст}(U_1). \quad (3)$$

Тут L – товщина зразка, D – коефіцієнт дифузії носіїв заряду, $I_{вст}(U_1)$, $I_{вст}(U_2)$ – встановлені значення струму при напругах U_1 та U_2 відповідно. При дискретизації проміжків часу тривалістю більшою, ніж 10 с, реєструються більш повільні процеси, пов'язані з розсіюванням носіїв на недосконалостях та дефектах кристалічної ґратки, що описуються сумою показникових функцій [4]:

$$I(t) = I_{U_0} + \sum_{i=1}^5 I_{U_i} \exp(-t/\tau_i), \quad (4)$$

де I_{U_i} – коефіцієнти апроксимації. Виявилось, що перехідний процес встановлення струму досить точно апроксимується виразом (4) з часами релаксації $\tau_1=155$ хв., $\tau_2=30$ хв., $\tau_3=6$ хв., $\tau_4=1$ хв., $\tau_5=0,2$ хв., які практично не залежать від прикладеної до зразка напруги та його геометрії. У [4] доведено, що кожна з цих складових зумовлена розсіюванням іонів йоду чи дірок на конкретних типах дефектів.

Методика вимірювань. Для експериментів готували два типи зразків, які надалі умовно називатимемо товстими та тонкими. Товсті зразки, де в значному об'ємі напруженість електричного поля практично однакова, були кубічними з ребром 3 мм, що відповідає стандарту ASTM F28-91. Площа контактів товстих зразків становила 9 мм². Тонкі зразки, де вплив об'ємних зарядів поширюється на весь зразок, виготовляли у формі прямокутних паралелепіпедів розмірами 10×10×0,1 мм та площею контактів 70 мм². Електричні контакти наносили на протилежні грані зразків перпендикулярно до осі *c* хімічно інертною електропровідною пастою на основі графіту з паладієм та доповнювали платиновими відводами.

Зразок розміщували в екранованому від світла та статичних електричних полів термостаті, де протягом експерименту автоматично підтримувалася постійна температура з точністю до 0,1 К. Вимірювання проводили електрометром-мікрвольтметром В7-29, що під'єднувався до установки тридротівим бікоаксіальним фідером, опір ізоляції якого становив не менше 10 ГОм. Послідовний додатний зворотний зв'язок забезпечував багатократне збільшення ефективного опору ізоляції та зменшення вхідної ємності вимірювальної схеми до 1 пФ, що дозволило забезпечити постійну часу входу приладу, меншою, ніж 0,1 с.

Вимірювання проводили на зразках, що були попередньо закорочені та заземлені протягом доби до початку експерименту. Для зняття кожної точки ВАХ використовувалася наступна методика: зразок нагрівали до потрібної температури, витримували при ній 2 год., а потім вмикали напругу, що відповідає конкретній точці ВАХ. Далі протягом 4 год. поточною через 1 хв. знімали перехідну характеристику і апроксимацією визначали встановлене значення струму.

Після 6 год. перебування під напругою зразок закорочували на резистор опором 1 ГОм і за спадом напруги на ньому реєстрували перехідний процес зміни струму деполаризації.

Обговорення результатів вимірювання. На рис. 3 зображено експериментально зняті при різних температурах ВАХ для тонкого зразка і квадратичні та лінійні апроксимації окремих її ділянок. Квадратична ділянка ВАХ (залежність Герні-Мотта [3]) формується внаслідок інжекції дірок із контакту в зразок. Початкова ділянка (до 1 В) реально знятих ВАХ моделюється функцією:

$$I = A(U - U_0)^2, \quad (5)$$

де *A* та *U*₀ – коефіцієнти апроксимації. У таблиці наведено значення цих коефіцієнтів та розраховані за ними відповідно до наведених у [5] формул значення рухливості *μ* дірок при різних температурах *T* зразка.

Таблиця 1

<i>T</i> , К	433	453	473
<i>A</i> , нА·В ⁻²	5,7	6,5	9,5
<i>U</i> ₀ , В	0,2	0,2	0,2
<i>μ</i> , м ² ·В ⁻¹ ·с ⁻¹	3,9·10 ⁻⁷	4,4·10 ⁻⁷	6,5·10 ⁻⁷
Δ <i>W</i> _h , еВ	0,91	0,92	0,93

Аналіз показав, що рівноважна концентрація *n*₀ дірок змінюється з температурою за розподілом Максвелла-Больцмана з енергією активації Δ*W*_h=(0,90±0,04) еВ. Причому зі зростанням температури значення Δ*W*_h дещо збільшується, а при зниженні температури величина Δ*W*_h чітко прямує до 0,90 еВ. Це означає, що рівень, який відповідає за рівноважну концентрацію дірок, знаходиться в забороненій зоні на 0,90 еВ вище від верху валентної зони.

При напрузі на зразку, вищій від 0,9 В, характер ходу ВАХ тонких зразків суттєво змінюється. Такий результат пояснюємо електролізом у твердому електроліті РbI₂, що зумовлений гарячими інжекткованими носіями. За даними [7], стандартна

вільна енергія Гіббса утворення молекули PbI_2 складає $-173,6$ кДж/моль, що відповідає $1,8$ еВ на молекулу. Внаслідок обміну двома електронами енергія, що припадає на один із них, складає $0,9$ еВ. Подальша взаємодія іонів йоду та свинцю з неоднорідним електричним полем приконтантної області, різні рухливості дірок та іонів йоду призводять до виникнення приконтантної поляризаційної е.р.с., величина якої становить $0,9$ В, що видно з наведених на рис. 3 продовжень апроксимаційних залежностей лінійних ділянок ВАХ.

Характер ходу ВАХ для товстих зразків більш складний, що видно з наведеної на рис. 4 ВАХ, знятої при 291 К. Так, початкова ділянка ВАХ відповідає квадратичному закону Герні-Мотта, потім іде практично лінійне зростання, досягнення пікових значень струму та ділянка від'ємного диференціального опору. Достатньо полого ділянка ВАХ при напругах U на зразку, більших від 15 В, що формується в основному іонним струмом, вказує на виснаження концентрації рухомих іонів йоду при зростанні напруги U .

Визначити внутрішню е.р.с. для товстого зразка значно складніше, ніж для тонкого, адже необхідно враховувати значний омичний спад напруги в об'ємі кристалу та вплив поверхневих струмів. Для цього використано розроблений у [4] метод, що дозволяє виділяти із загального струму окремі складові, які формуються різними чинниками. Виявилось також, що перехідні процеси з часом релаксації $\tau_2=30$ хв. (розсіювання іонів йоду на дефектах типу $Pb^{+}+V$ [4]) наявні лише при напругах, більших від 8 В. Виділивши із загального струму цю складову, визначили створюваний нею окремо спад напруги U_d на зразку. На рис. 5 зображено розраховану залежність U_d від напруги на зразку. Екстраполюючи значення U_d до нульового струму через зразок (при нульовій напрузі на ньому), отримуємо прогнозоване значення $0,9$ В.

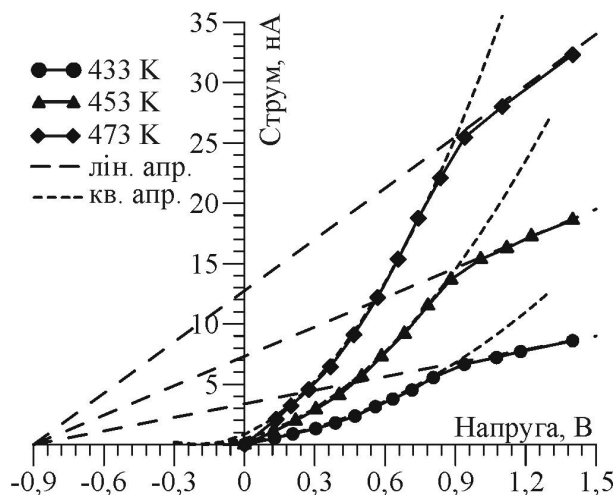


Рисунок 3 - ВАХ тонкого зразка. Суцільні криві – експеримент; штрихові – апроксимація

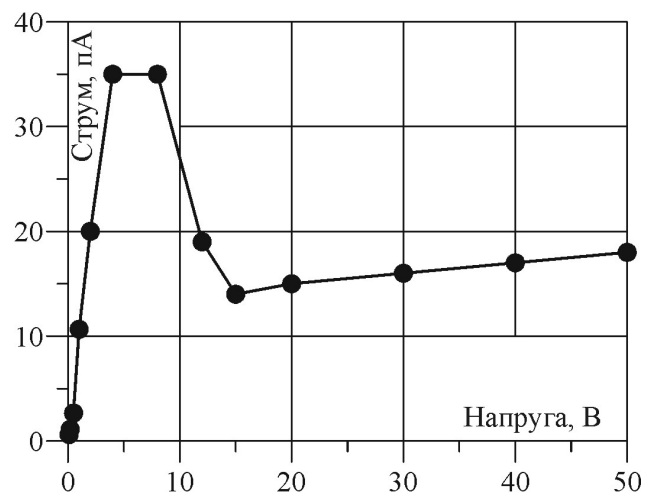


Рисунок 4 - ВАХ товстого зразка

Виникнення напруги U_d супроводжується зменшенням напруги у товщі кристалу і, як наслідок, утворенням від'ємного диференціального опору цієї ділянки ВАХ. Наявність від'ємного диференціального опору часто супроводжується коливанням величини струму через зразок із періодом біля 5 хв.

Оцінити характер змін концентрації об'ємних зарядів у зразках від прикладеної до нього напруги можна також реєстрацією початкового струму деполяризації (через 1 хв. після початку процесу), хід якого для товстого зразка при температурі 291 К зображено на рис. 6. Видно, що в діапазоні напруг на зразку $8-15$ В, тобто коли починається ініційований інжектіваними носіями процес дисоціації молекул PbI_2 , початковий струм деполяризації досягає максимальних значень. Подальше зростання напруги на зразку зумовлює розсмоктування об'ємних зарядів, зменшення їхньої концентрації та відповідне зменшення величини початкового струму деполяризації.

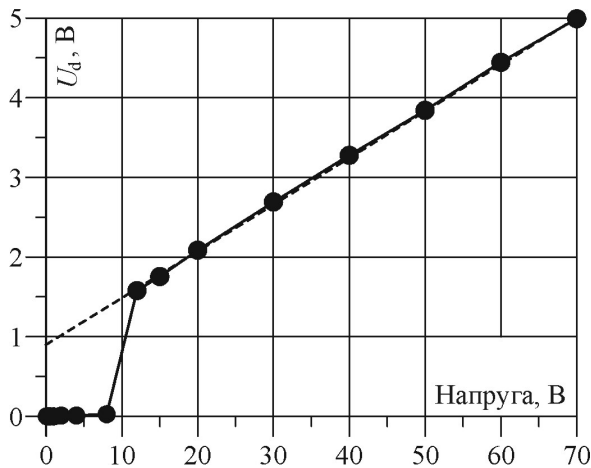


Рисунок 5 - Залежність U_d від напруги на зразку

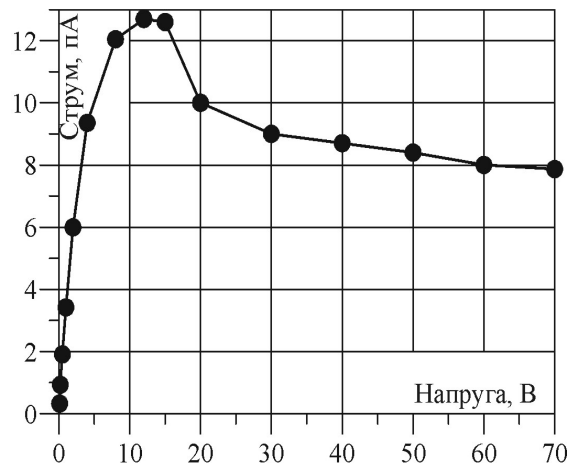


Рисунок 6 - Залежність початкового струму деполаризації від напруги поляризації

Висновки. Запропонований у роботі спосіб вимірювання ВАХ монокристалів PbI_2 дозволив виявити два стабільних режими, що відповідають повільній та стрибкоподібній зміні напруги на зразку. З'ясовано причини існування таких станів, що надзвичайно важливо при проектуванні датчиків. Досліджено термічну залежність рівноважної концентрації дірок, визначено температурну залежність їхньої рухливості та розраховано рівень активації дірок. Експериментально підтверджено виникнення приконтатної поляризаційної е.р.с. та розраховано її значення.

Література

1. Ponpon J.P., Stuck R., Amann M., Selective trap filling induced by electron pulse excitation during TSC measurement in PbI_2 // Appl. Phys. (a). – 2003. – №71. – P. 137-139.
2. Гасьмаєв Ю.В., Калущ О.З., Гасьмаєв В.К. Електрофізичні властивості вимірювальних структур на основі монокристалів PbI_2 // Науковий вісник Інституту економіки та нових технологій: Нові технології. – 2004. – №1-2(4-5). – С. 46-50.
3. Ламперт М., Марк П. Инжекционные токи в твердых телах. – М.: Мир, 1973. – 416 с.
4. Пастернак Р.М. Температурна залежність рухливості іонів йоду в монокристалах дийодиду свинцю // Науковий вісник Волинського державного університету. – 2006. – №4. – С. 225-231.
5. Пастернак Р.М. Використання функції Ламберта для аналізу інжекційних струмів у широкозонних матеріалах // Науковий вісник Чернівецького університету. Фізика. Електроніка. – 2005. – Вип. 237. – С. 101-103.
6. Lingras A.P., Simkovich G. Electrochemical studies on lead iodide // J. Phys. Chem. Solids. – 1978. – №39. – P. 1225-1229.
7. Справочник химика. В 2-х томах. – Т. 1. – М.: Госхимиздат, 1962. – 330 с.

Одержано 17.09.2008 р.