

06

Температурная зависимость диэлектрических параметров тонких слоев As_2Se_3 с большим содержанием висмута

© Р.А. Кастро, В.А. Бордовский, Г.И. Грабко

Российский государственный педагогический университет
им. А.И. Герцена, Санкт-Петербург
E-mail: recastro@fromru.com

Поступило в Редакцию 16 июня 2010 г.

Представлены результаты исследования температурно-частотных зависимостей диэлектрических параметров в модифицированных слоях триселенида мышьяка с добавкой висмута. В инфранизкочастотном диапазоне при повышении температуры обнаружены значительное увеличение вещественной составляющей комплексной диэлектрической проницаемости и появление максимумов диэлектрических потерь, смещающихся с увеличением частоты в сторону более высоких температур.

Принцип работы многих современных электронных устройств связан с процессами зарядообразования и токопереноса: наблюдающимися как в объемных, так и в поверхностных слоях различных полупроводниковых систем при приложении к ним переменных и постоянных электрических полей, а также других внешних факторов воздействия [1–3]. Наличие низкокоординированной, лабильной структуры, широкий энергетический спектр локальных состояний, расположенных в запрещенной зоне халькогенидных аморфных и стеклообразных полупроводников (ХСП), обуславливают способность этих материалов к значительному накоплению заряда. При этом введение примесей оказывается эффективным с точки зрения влияния на характеристики данных систем [4].

Так, долгое время после открытия полупроводниковых свойств ХСП не удавалось обнаружить примесную проводимость этих структур и, в частности, классического представителя данных материалов триселенида мышьяка As_2Se_3 [5]. Однако в последние годы в этом направлении достигнуты значительные успехи с точки зрения как определения меха-

низмов влияния примесей на электропроводность и другие физические свойства легированных ХСП [6], так и использования этих составов в различных областях твердотельной электроники [7].

К настоящему моменту опубликовано большое количество работ, в которых рассматриваются вопросы, связанные с влиянием легирующих добавок и, в частности, висмута Bi на проводимость системы As-Se [4,8,9]. Но тем не менее до сих пор мало уделяется внимания изучению диэлектрических характеристик данных составов [10], хотя исследования такого рода необходимы для установления корреляции между процессами диэлектрической поляризации и электропереноса, что в свою очередь является актуальным с точки зрения определения надежности работы как самих полупроводниковых систем, так и электронных устройств на их основе. Более того, экспериментальное изучение процессов диэлектрической поляризации в условиях воздействия различных внешних факторов оказывается эффективным для установления энергетической структуры исследуемого полупроводникового материала и, в частности, особенностей спектра локальных состояний.

Целью данной работы явилось изучение температурных зависимостей составляющих комплексной диэлектрической проницаемости (ϵ' и $\text{tg } \delta = \epsilon''/\epsilon'$) в аморфных пленках As_2Se_3 с добавками Bi в широком диапазоне частот.

Конденсаторные структуры, на которых проводились диэлектрические измерения $\text{Al-As}_2\text{Se}_3\langle\text{Bi}\rangle_x\text{-Al}$, были приготовлены методом высокочастотного распыления [10]. Толщина слоев $\text{As}_2\text{Se}_3\langle\text{Bi}\rangle_x$ ($x = 10 \text{ at.}\%$) составляла порядка $\sim 1.0 \mu\text{m}$, а площадь перекрытия электродов $\sim 14.0 \text{ mm}^2$.

Измерения температурно-частотных зависимостей составляющих комплексной диэлектрической проницаемости слоев $\text{As}_2\text{Se}_3\langle\text{Bi}\rangle_x$ были выполнены в частотном интервале $5 \cdot 10^{-3} \div 10^5 \text{ Hz}$ на спектрометре „Concept-41“ фирмы Novocontrol Technologies, предназначенном для исследования диэлектрических и электропроводящих свойств материалов в широком диапазоне частот и температур. Установка состоит из частотного анализатора импеданса ALPHA ANB, измерительной ячейки, устройства термостатирования Novocool Cryosystem, сосуда Дьюара с системой испарения и подачи газообразного азота, а также системы автоматического сбора данных с компьютерным интерфейсом. Температура исследуемых образцов T менялась в пределах 233–343 К, а напряжение, подаваемое на них, составляло 0.1 В.

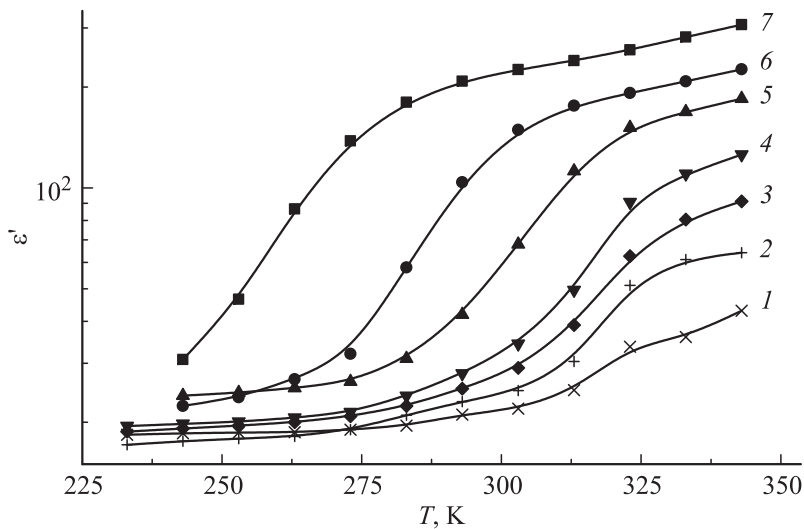


Рис. 1. Температурная зависимость вещественной составляющей комплексной диэлектрической проницаемости; f , Hz: 1 — 10.0, 2 — 6.6, 3 — 4.25, 4 — 3.0, 5 — 1.0, 6 — $1.5 \cdot 10^{-1}$, 7 — $5 \cdot 10^{-3}$.

На рис. 1, 2 представлены температурные зависимости составляющих комплексной диэлектрической проницаемости $\epsilon^* = \epsilon' + i\epsilon''$, снятых при разных частотах прикладываемого электрического поля. Из анализа экспериментальных данных следует, что весь частотный интервал можно разбить на два участка: $f_1 = 5 \cdot 10^{-3} \div (\sim 10)$ Hz и $f_2 > 10$ Hz.

На частотах $f < f_1$ для всех кривых $\epsilon'(T)$ (рис. 1) при определенной температуре наблюдается резкое возрастание (более чем на порядок) вещественной составляющей комплексной диэлектрической проницаемости. Дальнейшее увеличение T сопровождается переходом $\epsilon'(T)$ к насыщению. Из рис. 1 следует, что чем меньше частота, тем круче возрастающая ветвь данной зависимости и меньше значение T , при котором начинается резкое изменение ϵ' .

Кривые $\text{tg } \delta(T)$ для $f < f_1$ (рис. 2) характеризуются наличием максимумов, которые соответствуют участкам резкого увеличения $\epsilon'(T)$, снятых при тех же частотах. Причем с ростом f увеличиваются значения $\text{tg } \delta_{\text{max}}(T_{\text{max}})$ и T_{max} (см. таблицу).

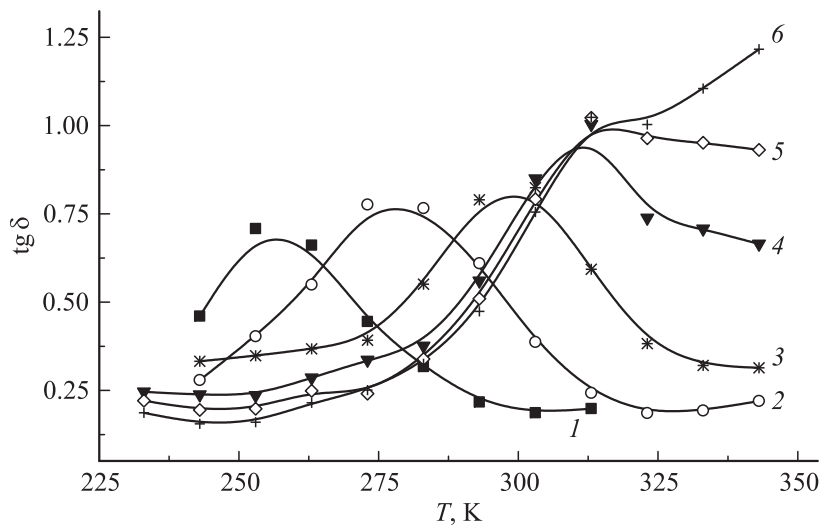


Рис. 2. Зависимость тангенса угла диэлектрических потерь от температуры; f , Hz: 1 — $5 \cdot 10^{-3}$, 2 — $1.5 \cdot 10^{-2}$, 3 — 1.0, 4 — 3.0, 5 — 4.25, 6 — 6.6.

Такие особенности диэлектрических характеристик (резкий рост ϵ' и наличие $\max \operatorname{tg} \delta$) в инфранизкочастотной (ИНЧ) области могут быть объяснены на основе данных [10]. В этой работе, где изучалась дисперсия составляющих комплексной диэлектрической проницаемости для аналогичных составов, были получены подобные результаты, т.е. увеличение ϵ' (на порядок) в ИНЧ-диапазоне по сравнению с низкочастотной (НЧ) областью. Наблюдаемые аномалии связывались с

Координаты точек экстремумов $\operatorname{tg} \delta(T)$ для разных частот

f , Hz	T_{\max} , K	$\operatorname{tg} \delta_{\max}$
$5 \cdot 10^{-3}$	257	0.676
10^{-2}	262	0.712
$2.5 \cdot 10^{-2}$	266	0.722
$1.5 \cdot 10^{-1}$	278	0.763
1	299	0.8
3	311	0.937

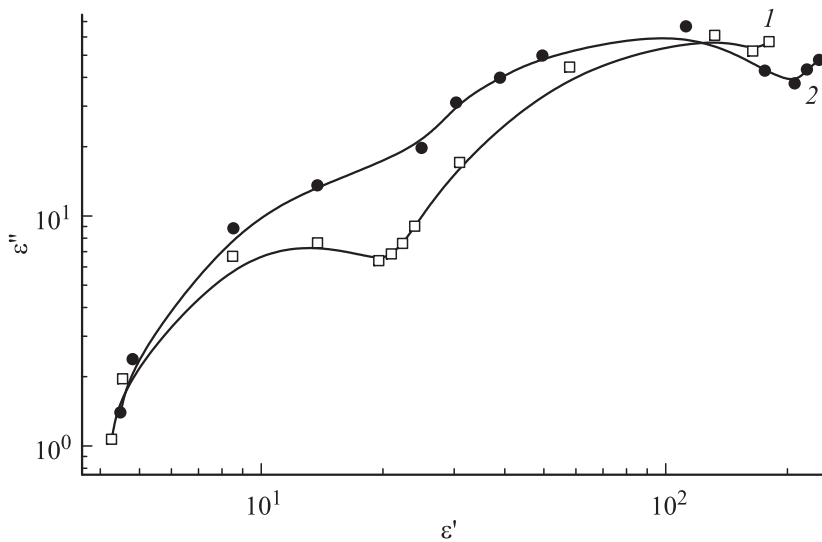


Рис. 3. Диаграммы Коула–Коула для двух T , К: 1 — 283, 2 — 313.

образованием и участием в поляризационном процессе значительного пространственного заряда, аккумулирующегося в приэлектродной области исследуемых структур, и с его откликом на прикладываемое к образцам переменное электрическое поле.

Наличие релаксационных максимумов на температурно-частотных зависимостях диэлектрических потерь позволяет рассчитать энергию активации ΔE уровня, ответственного за данные свойства исследуемой системы. Хотя в нашем случае мы, скорее всего, имеем дело с квазиуровнем, что следует из вида диаграмм Коула–Коула (рис. 3). Анализ зависимостей $\epsilon''(\epsilon')$ указывает на определенное распределение времен релаксации, характеризующее процесс диэлектрической поляризации, что также совпадает с выводами работы [10]. Используя апробированную методику [11], по экспериментальным данным было определено значение $\Delta E \approx 0.83 \pm 0.08$ eV. Большая ошибка, полученная при расчете этой величины, обусловлена наличием квазиуровня. Это не позволяет говорить о точности результата, но по крайней мере дает возможность качественно оценить энергию активации носителей

заряда (НЗ), участвующих в процессе диэлектрической поляризации в диапазоне инфранизких частот.

На границе между НИЧ- и НЧ-областями при $f \sim 4-10$ Hz происходит изменение механизма исследуемого релаксационного процесса, что сопровождается нивелированием как участков резкого возрастания $\varepsilon'(T)$, так и $\max \operatorname{tg} \delta(T)$.

Второй частотный участок $f_2 > 10$ Hz вплоть до максимальной $f \sim 10^5$ Hz характеризуется значительным уменьшением величины диэлектрической проницаемости. Несмотря на уменьшение численного значения ε' , зависимость вещественной составляющей комплексной диэлектрической проницаемости от T для $\sim 10 < f < 10^5$ Hz остается возрастающей.

Та же возрастающая зависимость при увеличении T характерна и для диэлектрических потерь при $f > 10$ Hz. Но при этом имеется существенное отличие. Если глубина изменения кривых $\varepsilon'(T)$: $\Delta\varepsilon' = \varepsilon'(T_{final}) - \varepsilon'(T_{initial})$ уменьшается с ростом f на всем интервале f_2 , то аналогичная характеристика для $\operatorname{tg} \delta(T)$ в начале этого частотного участка значительно увеличивается и при $f \sim 50$ Hz достигает максимального значения: $\Delta \operatorname{tg} \delta \approx 2$ и только затем начинает уменьшаться.

По-видимому, из-за низкой подвижности НЗ (характерной для данных составов [7]) при $f \sim 10-50$ Hz значительный заряд в приэлектродной области уже не успевает сформироваться, что и обуславливает уменьшение ε' . Тем не менее при этих частотах увеличение температуры продолжает „провоцировать“ тепловое движение группы релаксаторов, ответственных за резкое возрастание диэлектрической проницаемости в ИНЧ-диапазоне, и попытки обмена какой-то частью носителей заряда локализованными центрами. „Противоречие“ между результатами влияния двух факторов внешнего воздействия (T, f) и является причиной существенного увеличения диэлектрических потерь в начале второго частотного интервала.

Начиная с $f \sim 50 \div 100$ Hz работает уже только другая группа релаксаторов, в качестве которых могут выступать заряженные дефекты D^+, D^- , имеющие широкий спектр энергетических уровней в запрещенной зоне [7]. Помимо этого на границе областей, характеризующихся повышенной координированностью атомов (возникающих в результате присутствия легирующей добавки) [9] с основной матрицей исходного соединения, возникают потенциальные барьеры, которые также оказывают воздействие на процесс обмена НЗ между лока-

лизованными центрами и в целом на диэлектрическую поляризацию исследуемой системы.

Работа поддержана проектом № 02.740.11.0544 федеральной целевой программы „Научные и научно-педагогические кадры инновационной России“ Министерства образования и науки РФ.

Список литературы

- [1] *Eisenberg N.P., Manevich M., Arsh A., Klebanov M., Lyubin V.* // J. Optoelectronics and Advanced Materials. 2002. V. 4. P. 405.
- [2] *Aggarwal I.D., Sangera J.S.* // J. Optoelectronics and Advanced Materials. 2002. V. 4. P. 665.
- [3] *Kolobov A.V., Fons P., Frenkel A.I., Ankudinov A.L., Tominaga J., Uruga T.* // Nature Materials. 2004. V. 3. P. 703.
- [4] *Конников С.Г., Павлов С.К., Цэндин К.Д., Шифрин Е.И., Штунт В.Х.* // Письма в ЖТФ. 1989. Т. 15. В. 13. С. 48–51.
- [5] *Kolomiets B.T.* // Phys. St. Sol. 1964. V. 7. N 359. P. 713.
- [6] *Golovchak R., Shpotyuk O., Kovalskiy A., Miller A.C., Cech J., Jain H.* // Phys. Rev. B. 2008. V. 77. P. 172201-1–4.
- [7] *Электронные явления в халькогенидных стеклообразных полупроводниках* / Под ред. К.Д. Цэндина. СПб.: Наука, 1996. 486 с.
- [8] *Esme I., Zaïm Cil C., Aktas G.* // Appl. Phys. A. 1990. V. 51. P. 481–485.
- [9] *Цэндин К.Д.* // ФТП. 1991. Т. 25. В. 4. С. 617–622.
- [10] *Кастро Р.А., Бордовский В.А., Грабко Г.И.* // Письма в ЖТФ. 2010. Т. 36. В. 17. С. 9.
- [11] *Мазурин О.В.* Электрические свойства стекла. Л.: Ленгосхимиздат, 1962. 163 с.