

Длинновременная релаксация тока в естественно-неупорядоченном полупроводнике Pb_3O_4

© В.Т. Аванесян, М.П. Севрюгина

Российский государственный педагогический университет им. А.И. Герцена,
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: avanesyan@mail.ru

(Поступила в Редакцию 28 октября 2010 г.)

Исследованы процессы переноса заряда в структурах металл–диэлектрик–металл на основе поликристаллических слоев ортоплюмбата свинца Pb_3O_4 со связующим — цианэтиловым эфиром поливинилового спирта, нанесенных на стеклянную подложку с проводящей пленкой ГТО. Измерены временные зависимости тока в области температур $T = 300–370$ К и в интервале напряженностей постоянного электрического поля $E = 2 \cdot 10^5–9 \cdot 10^5$ В/м. Протекание релаксационного поляризационного тока приводит к накоплению заряда в приэлектродной области. Экспериментальные закономерности согласуются с положениями эстафетного механизма переноса заряда при участии глубоких локальных уровней. Определены значения микропараметров, характеризующих электротранспорт, при варьировании условий эксперимента.

Работа выполнена в рамках государственного контракта № 02.740.11.0544.

Оксидные системы Pb–O представляют интерес в связи с тем, что одиночные пары $6s$ -электронов в них, принадлежащие катионам Pb^{2+} , вызывают асимметричные координации, приводящие к образованию нецентрированных или полярных структур, характеризующихся естественным разупорядочением [1,2]. Состояния с одиночной электронной парой оказывают существенное влияние на формирование спектра локальных состояний в металлоксидных соединениях [3].

Темп генерации носителей заряда с ловушечных уровней в запрещенной зоне, а также захват на них оказывают влияние на инерционные и электрические характеристики электронных приборов на основе широкозонных полупроводников. Ортоплюмбат свинца относится к группе высокоомных фотопроводников с шириной запрещенной зоны 2.14 eV при температуре $T = 300$ К и в последнее время находит применение в качестве перспективного материала для оптоэлектронных технологий [4,5]. Проведенные ранее исследования [6] позволили детализировать спектр локальных состояний в Pb_3O_4 , характеризуемый как дискретной структурой, так и областями квазинепрерывного распределения.

В последние годы обнаруживается значительный интерес к изучению релаксационных свойств естественно-разупорядоченных систем, что связано с возможностью определения структурных макро- и микропараметров путем анализа кинетических характеристик процесса электрической поляризации и деполяризации. Релаксацию заряда в объеме полупроводника можно считать одним из факторов, определяющих стабильность характеристик элементов электроники. Релаксационные явления в высокоомной структуре связаны с проявлением какой-либо формы разупорядоченности [7], поскольку в идеально упорядоченной системе возможность обнаружения релаксирующих элементов сведена до минимума. Исследование временных зависимостей токов изотермической

релаксации дает возможность получить информацию о кинетике заполнения центров захвата, неоднородно расположенных по толщине полупроводника, а также о процессах захвата в приэлектродных областях [8].

Целью настоящей работы явилось изучение поляризационных явлений в поликристаллических слоях Pb_3O_4 методом временной токовой спектроскопии.

Измерения кинетических зависимостей токов поляризации проводилось на слоях Pb_3O_4 со связующим — цианэтиловым эфиром поливинилового спирта, нанесенных на стеклянную подложку с проводящей пленкой ГТО на основе оксидов индия, легированных оловом. В качестве верхнего электрода на поверхность исследуемого материала $50 \mu m$ наносился слой токопроводящей пасты (аквадаг) площадью $1 cm^2$. Значения токов изотермической поляризации регистрировались с применением электрометрического усилителя Keithley 6517A. Напряженность электрического поля варьировалась в пределах $E = 2 \cdot 10^5–9 \cdot 10^5$ В/м. Нагрев образца производился электропечью, вмонтированной в держатель, питание которой осуществлялось постоянным током от стабилизированного источника напряжения. Скорость нагрева в пределах 3–5 K/min можно было фиксировать в диапазоне $T = 300–370$ К.

На рис. 1 представлены результаты исследования временной зависимости изотермического тока поляризации $I(t)$ в слоях Pb_3O_4 для различных уровней напряженности электрического поля. При всех значениях приложенного напряжения имеет место спадающая релаксация тока с последующим установлением его стационарного уровня, позволяющая выделить быструю и медленную фазы релаксационного процесса. С ростом напряжения временной интервал начального участка кинетики тока поляризации уменьшается, а скорость спада функции $I(t)$ увеличивается. Форма приведенных зависимостей позволяет предположить существование в исследуемой

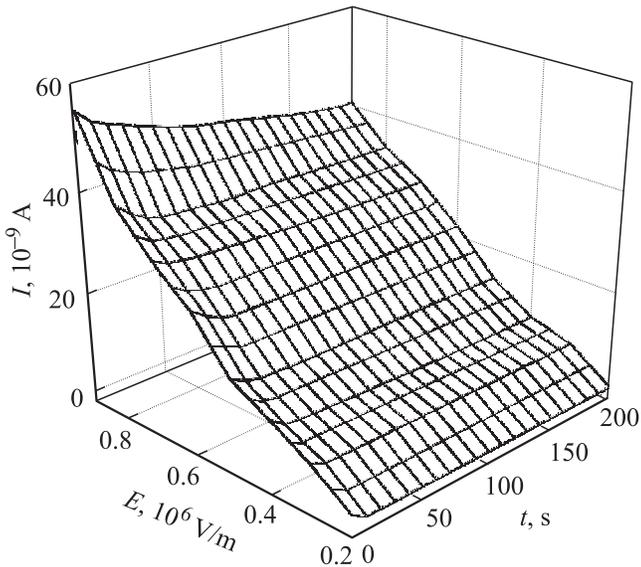


Рис. 1. Полевая зависимость кинетики поляризационного тока в слое Pb_3O_4 . $T = 300 \text{ K}$.

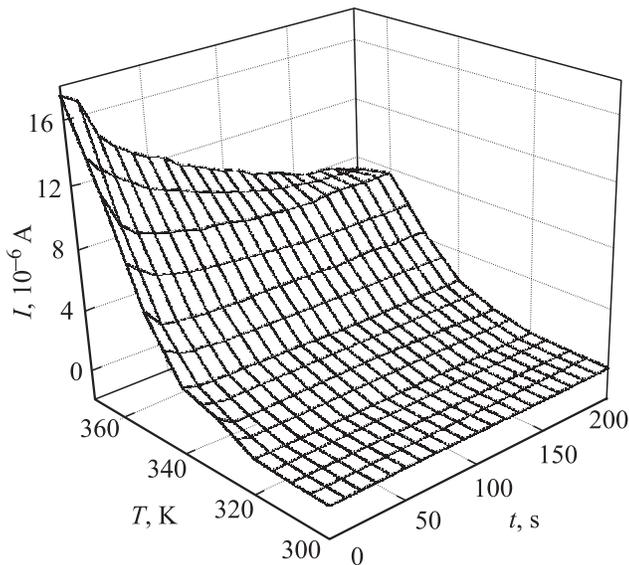


Рис. 2. Температурная зависимость кинетики поляризационного тока в слое Pb_3O_4 . $E = 5 \cdot 10^5 \text{ V/m}$.

системе значительного набора конечных времен релаксации.

Область быстрого спада поляризационного тока удовлетворяет универсальному закону диэлектрической релаксации, описываемому функцией $I \sim t^{-n}$, где показатель степени $n \approx 0.8$ [7], и, по-видимому, связана с носителями, освобожденными из ловушек, которые характеризуются высоким значением коэффициента эмиссии при данной температуре. Медленная составляющая кинетики поляризации отвечает экспоненциальной зависимости и, вероятно, обусловлена вкладом носителей, поступающих с локальных уровней, имеющих при тех же условиях малое поперечное сечение эмиссии.

Остаточная проводимость, согласно выводам теории эстафетного механизма [8], контролируется захватом носителей на глубокие центры, а также барьерами на межкристаллитных границах.

Наличие двух составляющих временной зависимости тока $I(t)$ отмечается во многих полупроводниках со структурным разупорядочением, а проявление длинновременной релаксации тока интерпретируется формированием пространственного заряда за счет захвата носителей заряда на локальные уровни и последующим термическим опустошением все более глубоких ловушек, приводящих к замедлению процесса. Релаксация тока в поликристаллических слоях Pb_3O_4 может сопровождаться образованием на границе зерно-прослойка области, обедненной носителями заряда, при этом неоднородный потенциальный рельеф пограничных зон в исследуемой поликристаллической структуре характеризуется поведением, эквивалентным влиянию квазинепрерывного энергетического спектра ловушек. Состояния неподеленных электронных пар, принадлежащих катионам двухвалентного свинца Pb^{2+} , или дефекты, возникновение которых обусловлено их присутствием, могут выступать в качестве факторов, стимулирующих появление локальных центров в структуре Pb_3O_4 [2].

На рис. 2 представлены результаты изучения кинетики поляризационного процесса при изменении температуры образца. Основной вклад в проводимость, вероятно, обусловлен термической активацией носителей заряда с глубоких уровней захвата, подвижность которых в соответствии с теорией эстафетного механизма имеет экспоненциальную зависимость от температуры [8,9].

Наблюдаемая в электрическом поле релаксация тока сопровождается процессом накопления заряда Q , длительное время сохраняющегося в исследуемой структуре. На рис. 3 приведены зависимости значения этого заряда от напряженности электрического поля и темпе-

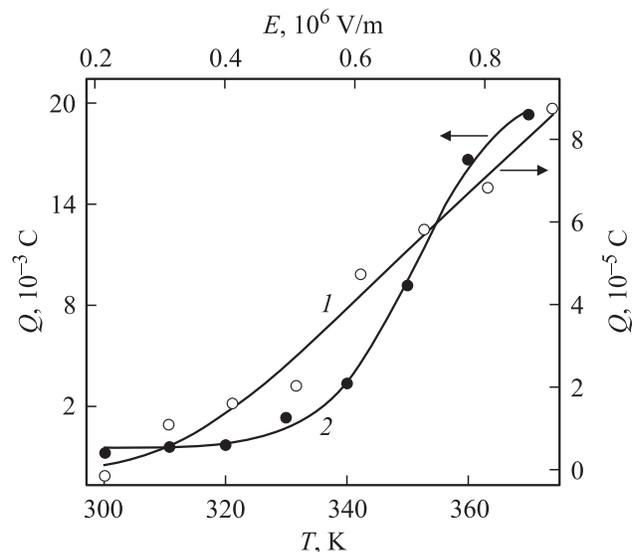


Рис. 3. Полевая (1) и температурная (2) зависимости заряда, накопленного в слое Pb_3O_4 .

ратуры образца при фиксированном времени приложения напряжения поляризации $t = 200$ s. Величина заряда определялась по площади, лежащей под кривой зависимости тока от времени. Можно заметить, что при малых электрических полях накопленный заряд увеличивается (рис. 3, кривая 1) в первом приближении по квадратичному закону, соответствующему выводам [9], а при дальнейшем росте значения напряжения поляризации изменяются согласно линейной зависимости. Обращает на себя внимание нелинейность функции $Q(E)$, а также существенное увеличение заряда и соответственно контактной емкости образца при $T > 340$ K (рис. 3, кривая 2).

Отмеченные особенности поведения полученных экспериментальных зависимостей соответствуют выводам теории эстафетного механизма переноса инжектированного заряда [9], учитывающей формирование заряда в приэлектродной области и наличие в объеме полупроводника локальных состояний с глубокими уровнями захвата, по которым реализуется прыжковая проводимость.

Величина заряда, накопленного в процессе электропереноса, в соответствии с выводами [9] находится из выражения

$$Q = \mu_{\text{eff}} \varepsilon \varepsilon_0 S \frac{U^2}{L^3} t, \quad (1)$$

где μ_{eff} — эффективная подвижность носителей заряда, перенос которых осуществляется через запрещенную зону, ε — диэлектрическая проницаемость полупроводника, ε_0 — электрическая постоянная, S — площадь контакта металл–полупроводник, U — приложенное напряжение, L — толщина слоя, t — время поляризации.

Зависимость заряда, накопленного у электрода, от величины тока, протекающего через систему, в пренебрежении током утечки имеет вид [10]

$$Q = C_c U - \sqrt{\frac{C_c L^3 I}{\mu_{\text{eff}} d_c}}, \quad (2)$$

где C_c — емкость контакта металл–полупроводник, d_c — толщина приконтактной области сосредоточения заряда.

Из формулы (1) с учетом значения тока отсечки I_c , полученного согласно уравнению (2) экспраполяцией зависимости $I(t)$ при $Q = 0$ и емкости контакта $C_c = Q/U = \varepsilon \varepsilon_0 S/d_c$, можно получить

$$\mu_{\text{eff}} = \frac{L^3 I_c}{U^2 \varepsilon \varepsilon_0 S}. \quad (3)$$

Таким образом, для определения полевой зависимости эффективной подвижности необходимо учитывать соответствующие изменения параметров ε и I_c . Расчет указанного параметра при варьировании величины напряженности электрического поля приводит к значениям эффективной подвижности и скорости дрейфа носителей заряда, находящимся в интервалах

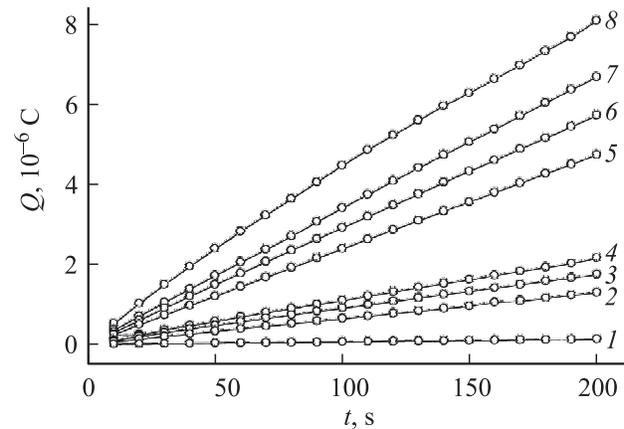


Рис. 4. Зависимость величины заряда, накопленного в слое Pb_3O_4 , от времени выдержки при различной напряженности приложенного электрического поля. E , 10^5 V/m: 1 — 2.0, 2 — 3.0, 3 — 4.0, 4 — 5.0, 5 — 6.0, 6 — 7.0, 7 — 8.0, 8 — 9.0.

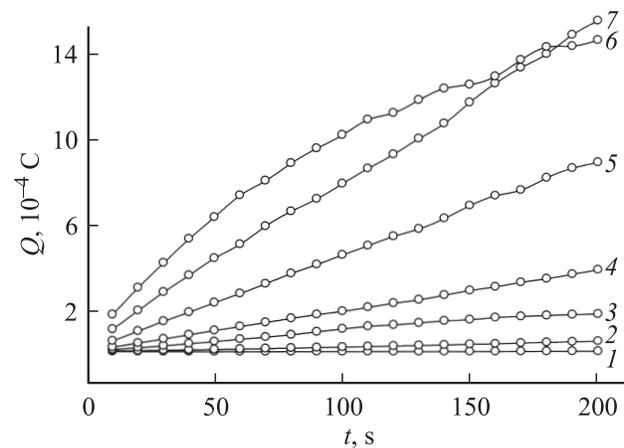


Рис. 5. Зависимость величины заряда, накопленного в слое Pb_3O_4 , от времени выдержки при различной температуре. T , K: 1 — 300, 2 — 320, 3 — 330, 4 — 340, 5 — 350, 6 — 370, 7 — 360.

$3.7 \cdot 10^{-10} - 5.6 \cdot 10^{-10}$ $m^2/(V \cdot s)$ и $9.4 \cdot 10^{-5} - 4.3 \cdot 10^{-4}$ m/s соответственно.

На рис. 4 и 5 приведены экспериментальные зависимости величины заряда, накопленного в слое Pb_3O_4 , от времени выдержки при различных значениях напряженности электрического поля и температуры образца. Увеличение напряжения поляризации и рост температуры приводят к нелинейному характеру изменения функции $Q(t)$ и соответственно нелинейности емкости контакта металл–полупроводник, что, по-видимому, связано с определенной ролью связующего диэлектрика в создании барьерных областей и концентрации поля на границах кристаллитов исследуемой структуры.

Результаты исследования поляризационного процесса в поликристаллических слоях ортоплюмбата свинца свидетельствуют о том, что наблюдаемая релаксация тока связана с накоплением заряда в приэлектродной области образца. Поведение основных характеристик

релаксационного процесса согласуется с положениями эстафетного механизма переноса инжектированного заряда при участии глубоких локальных уровней захвата носителей.

Изучение релаксации тока, обусловленной накоплением и перераспределением объемного заряда, расширяет представления о механизмах переноса заряда в соединениях $A^{IV}B^{VI}$ с переменной ионно-ковалентной связью и тенденцией к формированию естественно-неупорядоченной структуры.

Список литературы

- [1] V.T. Avanesyan, V.A. Bordovskii. *J. Non-Cryst. Solids* **351**, 2849 (2005).
- [2] V.T. Avanesyan, V.A. Bordovskii, S.A. Potachev. *J. Non-Cryst. Solids* **305**, 136 (2002).
- [3] В.Г. Орлов, С.А. Буш, С.А. Иванов, В.В. Журов. *ФТТ* **39**, 865 (1997).
- [4] R.E. Dinnebier, S. Carlson, M. Hanfland, M. Jansen. *Am. Mineralogist* **88**, 996 (2003).
- [5] Г.А. Бордовский, В.А. Извозчиков. Естественно-неупорядоченный полупроводниковый кристалл. Образование, СПб. (1997). 422 с.
- [6] В.А. Извозчиков, О.А. Тимофеев. Фотопроводящие окислы свинца в электронике. Энергия, Л. (1979). 144 с.
- [7] A.K. Jonsher. *Universal relaxation law*. Chelsea Dielectrics Press, London (1996). 415 p.
- [8] С.Н. Мустафаева, А.И. Гасанов. *ФТТ* **46**, 1937 (2004).
- [9] Б.Л. Тиман. *ФТП* **7**, 225 (1973).
- [10] Б.Л. Тиман. *ФТП* **7**, 230 (1973).