

РАДИАЦИОННО – СТИМУЛИРОВАННЫЕ ПРОЦЕССЫ ДИФФУЗИИ КИСЛОРОДА В СЛОЯХ ХАЛЬКОГЕНИДОВ СВИНЦА

М.Х.Рахмонкулов,

Ферганский государственный университет

АННОТАЦИЯ

В данной работе рассмотрено радиационно – стимулированные процессы диффузии кислорода в слоях халькогенидов свинца. Установлено, что при γ – облучении n – PbTe происходит рост высоты потенциальных барьеров у границ кристаллитов, вызванной нагревом образцов в процессе облучения. Показано, что электрические свойства слоев PbS определяются состоянием границ кристаллитов, в частности концентрацией акцепторных поверхностных состояний в них.

Ключевые слова: γ – излучения, термическая диффузия, дрейфовая подвижность, поликристаллическая пленка, потенциальные барьеры, халькогенидов свинца, коэффициент термоэдс.

ABSTRACT

In this paper, radiation-stimulated processes of oxygen diffusion in layers of lead chalcogenides are considered. It has been established that during γ - irradiation of n - PbTe, the height of potential barriers at the boundaries of crystallites increases, caused by heating of the samples during irradiation. It is shown that the electrical properties of PbS layers are determined by the state of crystallite boundaries, in particular, by the concentration of acceptor surface states in them.

Keywords: γ - radiation, thermal diffusion, drift mobility, polycrystalline film, potential barriers, lead chalcogenides, thermopower coefficient.

ВВЕДЕНИЕ

Действие излучений на полупроводники, в том числе и полупроводниковые пленки, приводит к образованию радиационных дефектов, переводящих их в состояния со свойствами отличными от первоначальных. Эти состояния могут быть как равновесными, так и неравновесными [1].

Радиационные эффекты в поликристаллических структурах определяется спецификой их электронной структуры, определяемой наличием поверхностных состояний на границах кристаллитов (ГК) за счет существования на них оборванных связей дислокаций и примесей. Ионизирующее излучение из-за атермических (низкотемпературных) радиационно – стимулированных процессов может вызвать диффузионное

перераспределение примесей на ГК и благоприятствовать проникновению инородных примесей из внешней среды в пленки [2-31]. На специфику таких процессов, как и в случае термической диффузии, может существенно влиять потенциальные барьеры на ГК, что подтверждается чрезвычайно высокой, в сравнении с объемным материалом, подвижность примесей по ГК [3,4]. Изменение состояния на ГК за счет радиационно – стимулированных процессов может менять потенциальный рельеф пленок и их электронные свойства [5,6]. Ниже приведены результаты экспериментального исследования действия излучений (в основном, γ - радиации) на электрофизические свойства пленок PbTe и PbSe и обсуждена природа радиационных эффектов. Выбор в качестве источника радиации γ - излучения обусловлен, с одной стороны, тем, что эксперименты можно проводить в лабораторных условиях, с другой стороны как показали исследования действие γ – квантов и реакторное облучение практически однотипно меняют, например свойства фоточувствительных слоев PbS, т.е. посредством γ излучения можно моделировать эффекты возникающие в радиационных полях имеющих иную природу.

ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Релаксация возбужденного состояния электронно – дырочного газа происходит за счет передачи их энергии решетке либо непосредственно в результате актов рассеивания, либо через возбуждение рекомбинационных центров. Естественно при этом происходит нагревание кристаллической решетки. Однако, обычно нагрев не так существенен и термическими процессами можно пренебречь. Энергия получаемая атомами примеси увеличивает вероятность межатомных перескоков, т.е. ускорят диффузию. В пленках, как уже отмечалось при действии излучений может стимулироваться диффузия примесей и в объеме кристаллитов ($D_{об}$) и вдоль ГК ($D_{ГК}$), причем здесь существенно сказывается условие $D_{ГК} \gg D_{об}$.

На рис.1 приведена дозовые зависимости изменения коэффициента термоэдс, электропроводности, холловской концентрации электронов, холловской и дрейфовой подвижности полученных при температурах 340 и 370 градусов Кельвина.

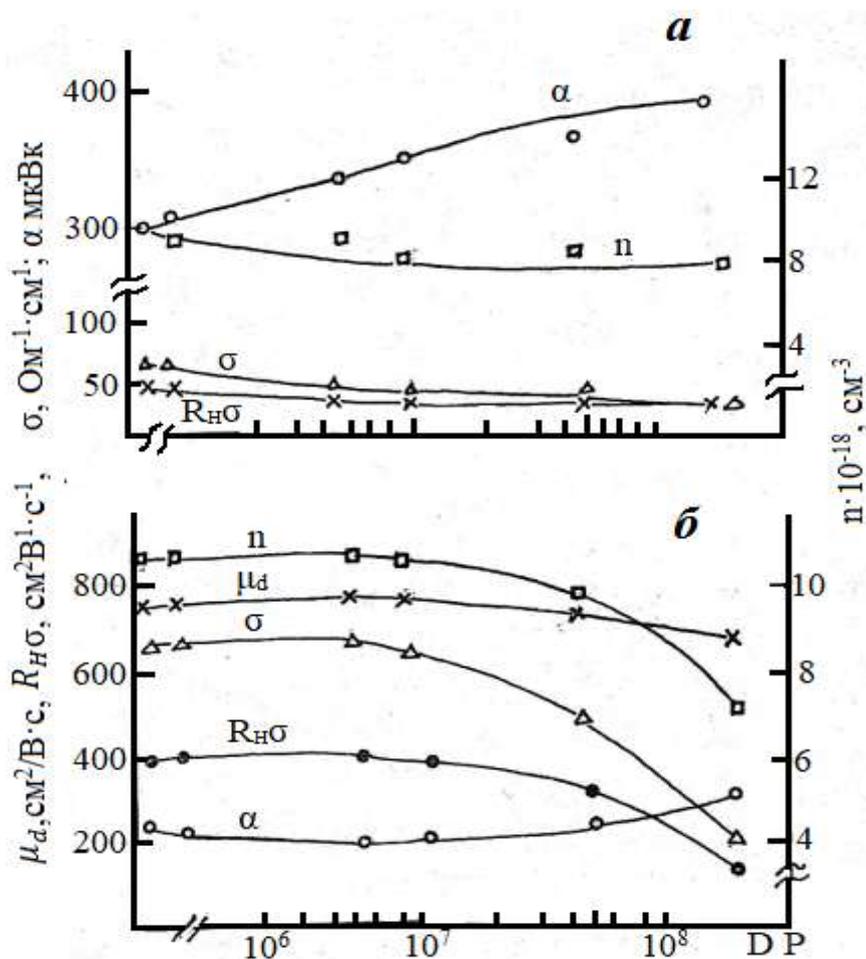


Рис.1. Влияние γ – облучения на параметры пленок $n - \text{PbTe}$ сконденсированных при 340 °К (а) и 370 °К (б). ($\circ - \alpha$, $\Delta - \sigma$, $\square - n$, $\bullet - R_H \sigma$, $\times - \alpha^2 \sigma$, $\times - \mu_\alpha$).

Дрейфовая подвижность μ_d (точнее порядок ее величины), характеризующая рассеянием электронов в объеме кристаллитов, определялась по изменению магнетосопротивления согласно соотношению:

$$\mu_d \approx \frac{1}{\pi^2 B} \left(\frac{E_F}{KT} \right) \sqrt[3]{\frac{\Delta \rho_B}{\rho}} \quad (1),$$

где r - параметр, характеризующий основной механизм рассеяния в материале пленки; $\Delta \rho_B / \rho$ - относительное изменение удельного сопротивления пленки в магнитном поле B .

Анализ данных рис.1 показывает значительную обусловленность интенсивности изменения физических свойств пленок при γ - облучении температурой конденсации. Наиболее стабильны свойства пленок $n - \text{PbTe}$, конденсированных при 340÷350 °К.

Исследования показали, что степень изменения термоэлектрических свойств пленок n-PbTe при γ -облучении зависит не только от температуры конденсации, но и от ее скорости, которая определяется температурой испарения шихты.

Холловская подвижность в поликристаллических пленках полупроводников зависит от рассеяния как в объеме кристаллов, так и от характера прохождения носителей заряда через потенциальные барьеры у ГК, причем величина $R_H\sigma/\mu_d$ свидетельствует, насколько эффективно ГК влияет на токоперенос. Более значительное падение $R_H\sigma$ в пленках n = PbTe при γ -облучении нежели μ_d , и достаточно слабое изменение холловской концентрации электронов (это хорошо видно на рис.1а) наталкивает на предположение, что при γ -облучении происходит рост высоты потенциальных барьеров у ГК. Наиболее вероятной причиной возрастания высоты потенциальных барьеров видится радиационно – стимулированная и термическая диффузия кислорода вдоль ГК (термическая диффузия может быть вызвана нагревом образцов в процессе облучения). При этом, чем сильнее разориентированы кристаллиты, тем выше коэффициент диффузии вдоль ГК и соответственно выше интенсивность проникновения на них кислорода.

При анализе экспериментов по влиянию γ -излучения на свойства пленок PbTe было высказано суждение, что причиной уменьшения холловской подвижности видится взаимодействие пленок с атмосферным кислородом, который при облучении преимущественно внедряется на ГК и способствует увеличению высоты потенциальных барьеров [5]. Для выяснения проведен следующий эксперимент. Пленки, осажденные на полиимиде при $T=360$ °К и имевшие близкие параметры, были поделены на три части. Одна часть образцов облучалась на воздухе, другая – в вакууме (для обеспечения вакуума эта группа образцов запаивалась в откачанные до 10^{-1} мм.рт.ст. кварцевые ампулы), третья подвергалась ТО на воздухе при 360 °К (именно до этой температуры нагреваются пленки в процессе облучения за счет воздействия γ -квантов). Исходные параметры пленок, подвергнутых внешнему воздействию:

$$\begin{aligned}\sigma &= 600 - 1000(\text{Ом}^{-1}\text{см}^{-1}), \alpha = 170 - 220(\text{мкВ} / \text{К}), \\ \alpha^2\sigma &= 30 - 50(\text{мкВ} / \text{К}^2 \text{см}), n_H = 1,0 - 1,2 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}, \\ R_H\sigma &= 350 - 600(\text{см}^2 / \text{В} \cdot \text{с}), \mu_d = 1200 - 1400(\text{см}^2 / \text{В} \cdot \text{с})\end{aligned}$$

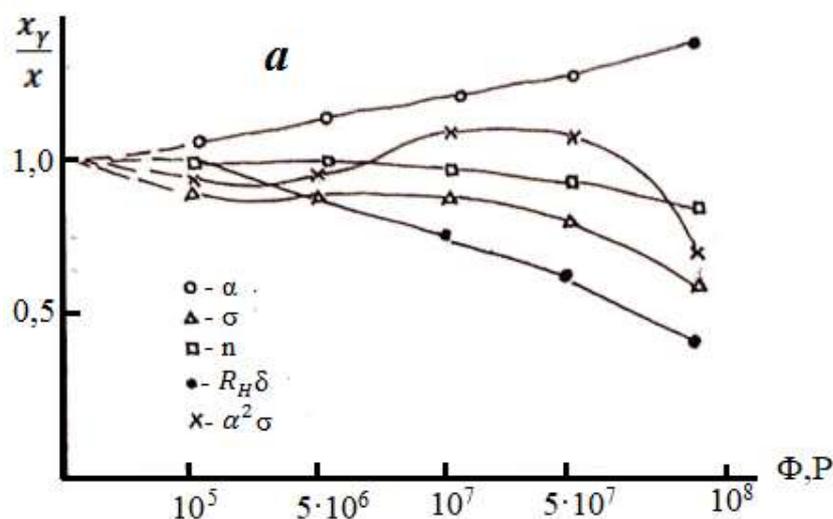


Рис.2 показаны относительные изменения кинетических параметров пленок при γ - облучении и ТО на воздухе.

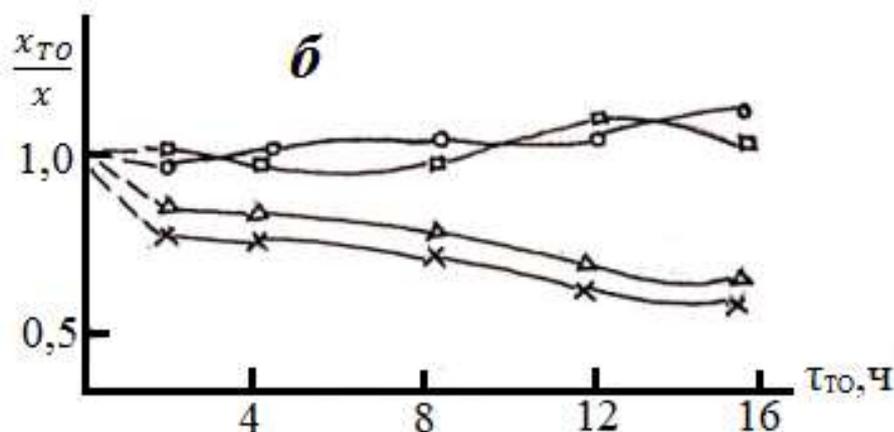


Рис.3. Относительное изменение параметров пленок n-PbTe, сконденсированных при 620 °К, при γ – облучении (2) и ТО (3) на воздухе.

Эти данные свидетельствуют, что параметры пленок наиболее сильно деградируют при γ - облучении на воздухе (рис.2) и ТО (рис.3) причем характер изменения электропроводности в обоих случаях практически одинаков. Пленки, облученные в вакууме, не меняли своих параметров вплоть до интегральных доз γ - квантов $5 \cdot 10^7$ (рис.3). Эти экспериментальные данные указывают на важную роль атмосферного кислорода в процессе деградации параметров пленок при облучении.

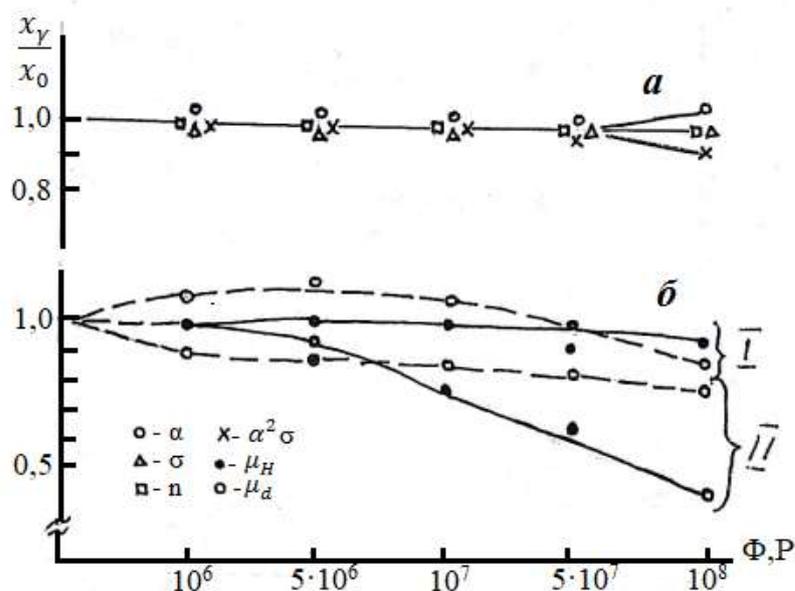


Рис.4. Относительное изменение коэффициента термоэдс, электропроводности, Холловской концентрации электронов и коэффициента термоэлектрической мощности при γ -облучении в вакууме (а) и относительное изменение Холловской и дрейфовой подвижности (б) при облучении в вакууме (I) и на воздухе (II).

На рис.5 представлены дозовые зависимости относительного изменения электропроводности фотослоев PbS при γ - и нейтронном облучениях. Эти данные свидетельствуют, что в определенном интервале доз облучения электропроводность (σ_γ) экспоненциально падает. Это указывает на то, что электрические свойства слоев PbS определяются состоянием ГК, в частности концентрацией акцепторных поверхностных состояний в них. Как нам представляется обоснованной причиной изменения параметров ГК является уменьшение концентрации кислородных состояний за счет стимулированной излучением диффузии межкристаллитной примеси с ГК к свободной поверхности пленки.

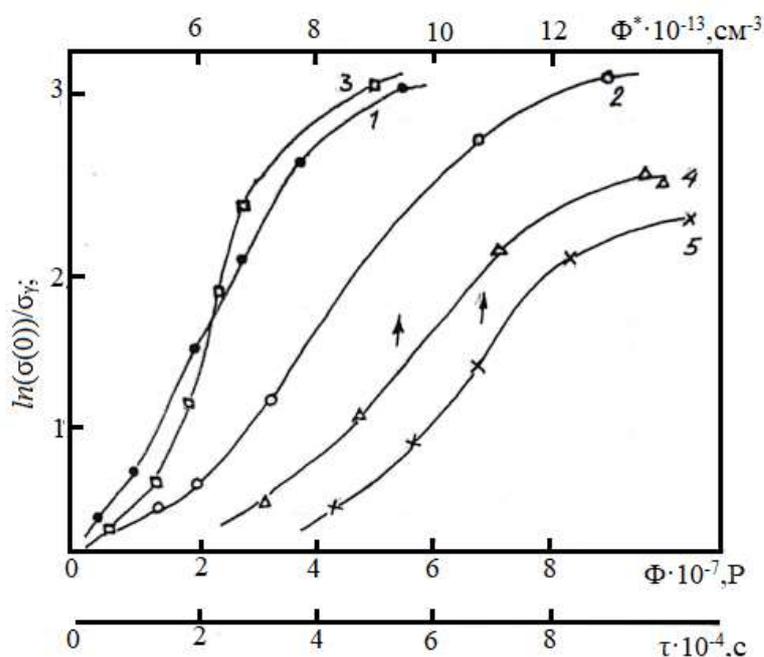


Рис.5. Влияние γ – облучения (1-3) и нейтронного облучения (4,5) на электропроводность фоточувствительных слоев PbS. Кривые 1, 2, 4, 5 – облучение в атмосфере без облучения; 3 – облучение при температура жидкого азота.

При этом, кинетика изменения электропроводности при облучении описывается соотношением

$$\ln [(t+\Delta t)/\sigma(t)] \approx -V/kT \cdot N_0 [1-4/\pi \cdot \exp(-4\pi^2/d \cdot D_{ГК} \cdot \Delta t)] \quad (2),$$

где $D_{ГК}$, характеризующее диффузионное истощение при термическом процессе, Δt - время изменения концентрации поверхностных состояний (в случае воздействия радиационных излучений $D_{ГК}$ необходимо заменить на $D'_{ГК}$ - коэффициент радиационно – стимулированной диффузии).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Сравнивая закономерности деградации свойств пленок в полях излучений с особенностями термической деградации, можно прийти к выводу, что они носят общий характер. В всех случаях имеет место уменьшение электропроводности слоев, изменение энергий активации электрических, фотоэлектрических и гальваномагнитных параметров. Таким образом, в рамках модели можно объяснить закономерности деградационных явлений.

REFERENCES

1. Otazhonov, S. M., Kh, R. M., Khalilov, M. M., Botirov, K. A., & Yunusov, N.

- (2021). Effect of group VII elements on strain sensitivity of polycrystalline films PbTe, PbS. *European science review*, (1-2), 35-38.
2. Отажонов, С., Эргашев, Р., & Юнусов, Н. (2013). ИЗУЧЕНИЕ ПОВЕРХНОСТНОЙ РЕКОМБИНАЦИИ ГЕТЕРОПЕРЕХОДОВ НА ОСНОВЕ p CdTe–n CdS и p CdTe–n CdSe. *SCIENCE AND WORLD*, 26.
3. С. Отажонов, Р. Эргашев. ИЗУЧЕНИЯ ВОЛЬТАМПЕРНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ФОТОЭЛЕМЕНТОВ НА ОСНОВЕ p CdTe – n CdS и p CdTe – n CdSe ПРИ ТЕРМИЧЕСКОЙ ОБРАБОТКЕ // ПРОБЛЕМЫ ФОТОНИКИ И ПЕРСПЕКТИВЫ РАЗВИТИЯ 1 (1), 4
4. С. Отажонов, Р. Эргашев, Қ. Ботиров. РАЗРАБОТКА СОЛНЕЧНЫХ ПЕРЕОБРАЗОВАТЕЛЕЙ НА ОСНОВЕ ГЕТЕРОСТРУКТУРЫ p CdTe – n CdS и p CdTe – n CdSe // “ENERGETIKA SOHASINI RIVOJLANTIRISHDA MUQOBIL ENERGIYA MANBALARINING ROLI” // NAMANGAN MUHANDISLIK – QURILISH INSTITUTI 1.2.4. 2022
5. Б.Каримов, Р.Эргашев, А.Срожиддинов. Прозрачные проводящие электроды на основе Sn // Научный вестник. ФерГУ, 147 2017
6. Отажонов, С. М., Рахмонкулов, М. Х., Мовлонов, П. И., & Юнусов, Н. (2021). Влияние термообработки на фотоэлектрические свойства гетероструктуры Cu_{2-x}Te-CdTe. *Science*, (1), 89.
7. МР Отажонов С.М Юнусов.Н Ботиров.Қ. Влияние VII группы элементов на тензочувствительность поликристаллических пленок PbTe, PbS//Has published the article in the European Science Review 1 (1), 25-28
8. МР Алимов Н Отажонов С.М. Создание преобразователя излучения на основе плёночной гетероструктуры p-CdTe-ZnSe//Scince and world International scientific journal 87 (11), 11-14с
9. Агаев, З.Ф. Электрические свойства монокристаллов PbTe с избытком свинца / З.Ф. Агаев, Г.З. Багиева, Дж.З. Нафталиева и др. // Физика твердого тела. – 2008. – № 3. – С. 92-94.
10. Багиева, Г.З. Влияние структурных дефектов на теплопроводность поли- и монокристаллического PbTe / Г.З. Багиева, Г.М. Муртузов, Г.Д. Абдинова и др. // Неорганические материалы. – 2012. – Т. 48. – № 8. – С. 901–904.
11. Вайткус, Ю.Ю. Влияние избытка теллура и свинца на деформационные характеристики поликристаллических пленок PbTe. / Ю.Ю. Вайткус, С.М. Отажонов, М.М. Халилов и др. // Scientific Bulletin. Physical and Mathematical Research. – Андижон. Узбекистан, June 2021. Vol. 3. Iss. 1.
12. Отажонов, С.М. Влияние деформации на миграцию дефектов в

фоточувствительных тонких пленках CdTe: Ag и PbTe. / С.М. Отажонов, К.А. Ботиров, М.М. Халилов. // ISSN 2308-4804. Science and world. – 2021. – № 6 (94).

13. Akhmedov, T. Effective dielectric permeability and electrical conductivity of polycrystalline PbTe films with disturbed stoichiometry. T Akhmedov, S M Otazhonov, M M Khalilov, N Yunusov, U Mamadzhanov, N M Zhuraev. Journal of Physics: Conference Series. 2131 (2021) 052008. doi:10.1088/1742-6596/2131/5/052008

14. Akhmedov, T. Optical properties of polycrystalline films of lead telluride with distributed stichiometry. T Akhmedov, S M Otajonov, Ya Usmonov, M M Khalilov, N Yunusov and A K Amonov. Journal of Physics: Conference Series. 1889 (2021) 022052. doi:10.1088/1742-6596/1889/2/022052

15. Dashevsky, Z. Thermoelectric efficiency in graded indium-doped PbTe crystals / Z. Dashevsky, S. Shuzterman, M.P. Dariel, I. Drabkin // Journal of Applied Physics. – 2002. – V. 92, №3. – P. 1425-1430.

16. Dzungza, B. Transport and thermoelectric performance of n-type PbTe films. B. Dzungza, L. Nykyruy, T. Parashchuk, E. Ivakin, Y. Yavorsky, L. Chernyak, Z. Dashevsky. Physica B Condensed Matter April 2020. DOI:[10.1016/j.physb.2020.412178](https://doi.org/10.1016/j.physb.2020.412178)

17. Otajonov, S.M. Effect of internal stress on the deformation characteristics of polycrystalline PbTe films with an excess of tellurium and lead. Otajonov S.M., Akhmedov T., Usmonov Ya., Botirov K.A., Khalilov M.M., Yunusov N. ISSN 2308-4804. Science and world. 2021. № 3 (91). Volgograd, 2021.

18. Otazhonov, S.M. Effect of group VII elements on strain sensitivity of polycrystalline films PbTe, PbS Otazhonov S.M., Rakhmonulov M.Kh., Khalilov M.M., Botirov K.A., Yunusov N. European Science Review Scientific journal № 1–2 2021 (January – February), doi.org/10.29013/ESR-21-1.2-35-38.

19. Tingjun, Wu. Te-Embedded Nanocrystalline PbTe Thick Films: Structure and Thermoelectric Properties Relationship. Tingjun Wu, Jae-Hong Lim, Kyu-Hwan Lee, Jiwon Kim, and Nosang V. Myung. pp. 2-12. Coatings 2021, 11, 356. <https://doi.org/10.3390/coatings11030356>

20. Hang-TianLiuQiangSunYan ZhongCheng-LiangXiaYue ChenZhi-GangChenRan Ang. Achieving high-performance n-type PbTe via synergistically optimizing effective mass and carrier concentration and suppressing lattice thermal conductivity//Chemical Engineering Journal 428 (2022) 132601Available online 24 September 20211385-8947/© 2021 Published by Elsevier B.V.

<https://doi.org/10.1016/j.cej.2021.132601//428.2022>

21. K. Hoang, S.D. Mahanti, Electronic structure of Ga-, In-, and Tl-doped PbTe: a supercell study of the impurity bands.// Phys. Rev. B. 78 (8) (2008), <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.78.085111>.
22. M.D. Nielsen, E.M. Levin, C.M. Jaworski, K. Schmidt-Rohr, J.P. Heremans, Chromium as resonant donor impurity in PbTe.//Phys. Rev. B 85 (2012), 045210.
23. Y.u. Xiao, H. Wu, W. Li, M. Yin, Y. Pei, Y. Zhang, L. Fu, Y. Chen, S.J. Pennycook, L. i. Huang, J. He, L.-D. Zhao, Remarkable roles of Cu to synergistically optimize phonon and carrier transport in n-type PbTe-Cu₂Te.// J. Am. Chem. Soc. 139 (51) (2017) 18732–18738.
24. T Akhmedov. Optical properties of polycrystalline films of lead telluride with distributed stichiometry. T Akhmedov, S M Otajonov, Ya Usmonov, M M Khalilov, N Yunusov and A K Amonov. Journal of Physics: Conference Series. 1889 (2021) 022052. doi:10.1088/1742-6596/1889/2/022052
25. T Akhmedov. Effective dielectric permeability and electrical conductivity of polycrystalline PbTe films with disturbed stoichiometry. T Akhmedov, S M Otazhonov, M M Khalilov, N Yunusov, U Mamadzhonov, N M Zhuraev . Journal of Physics: Conference Series. 2131 (2021) 052008. doi:10.1088/1742-6596/2131/5/052008
26. Otazhonov S. M. Effect of group VII elements on strain sensitivity of polycrystalline films PbTe, PbS Otazhonov S. M ., Rakhmonulov M. Kh., Khalilov M. M., Botirov K. A., Yunusov N. European Science Review Scientific journal № 1–2 2021 (January – February), doi.org/10.29013/ESR-21-1.2-35-38.
27. Y.Z. Pei, Z.M. Gibbs, A. Gloskovskii, B. Balke, W.G. Zeier, G.J. Snyder, Optimum carrier concentration in n-type PbTe thermoelectrics.//Adv. Energy Mater. 4 (2014) 1400486.
28. C.C. Stoumpos, S. Wang, T.P. Bailey, L.D. Zhao, C. Uher, M.G. Kanatzidis, Subtle roles of Sb and S in regulating the thermoelectric properties of n-type PbTe to high performance.//Adv. Energy Mater. 7 (2017) 1700099.
29. A.D. LaLonde, Y. Pei, G.J. Snyder, Reevaluation of PbTe_{1-x}I_x as high performance n- type thermoelectric material.//Energy Environ. Sci. 4 (6) (2011) 2090, <https://doi.org/10.1039/c1ee01314a>.
30. G.Z. Bagieva, G.M. Murtuzov, G.D. Abdinova, E.A. Allahverdiev, D.Sh. Abdinov / Influence of structural defects on the thermal conductivity of poly- and single-crystal PbTe / Inorganic materials. - 2012. Vol.48, No. 8. – P. 901-904
31. Z.F. Agaev, G.Z. Bagieva, J.Z. Naftalieva, B.Sh. Barkhalov / Electrical

properties of PbTe single crystals with an excess of lead // Physics of the Solid State.
- 2008. - No. 3. - P. 92-94.’

32. Z. Dashevsky, S. Shuzterman, M.P. Dariel, I. Drabkin Thermoelectric efficiency in graded indium-doped PbTe crystals // Journal of Applied Physics. – 2002. – Vol. 92, №3.– P. 1425-1430