

## Влияние ионизирующего излучения на механизм электропроводности монокристаллов $\text{TlInSe}_2$

Р. С. Мадатов, А. И. Наджафов, М. Р. Газанфаров

Исследованы электропроводности и вольтамперные характеристики (ВАХ) кристаллов  $\text{Tl:nSe}_2$  облученных гамма-квантами. Установлено, что наблюдаемые аномалии электропроводности при сильных полях и малых дозах облучения связаны с распадом нейтральных комплексов, в состав которых входит междоузельный атом катиона. Найдено, что при слабых полях менее  $10^2$  В/см механизм электропроводности обусловлен монополярной инжекцией заряда.

**Ключевые слова:** радиационный дефект, механизм электропроводности.

Electroconductivity and volt-ampere characteristic of  $\gamma$ -irradiated  $\text{TlInSe}_2$  monocrystals has been studied. It has been established that the observed anomalies of electroconductivity in weak fields and at low irradiation doses is connected with the decay of neutral complexes which are composed of interstitial cations. It was determined that in weak electric fields smaller than  $10^2$  V/cm mechanism of electroconductivity is caused by monopolar injection of a charge.

**Keywords:** radiation defect, mechanism of electroconductivity.

### Введение

Монокристаллы  $\text{TlInSe}_2$  относят к полупроводниковым соединениям типа  $\text{A}^3\text{B}^3\text{C}^6_2$  (A — Tl; B — Ga, In; C — S, Se, Te), имеющим цепочечную структуру. Эти материалы перспективны для использования в полупроводниковом приборостроении [1–6]. Атомы Tl в одновалентном состоянии окружены восемью атомами селена, а атомы индия в трехвалентном состоянии — четырьмя атомами селена. Таллиевые восьмивершинники и индиевые тетраэдры в направлении оси “с” образуют параллельные восьмивершинники и тетраэдры, связанные общими квадратными основаниями и горизонтальными ребрами [7]. Высокая концентрация собственных дефектов связана с сильной анизотропией сил связей в таких структурах, которая способствует возникновению многочисленных дефектов стыковки слоев, вакансий и дислокаций [8]. Это приводит к нарушению трансляционной инвариантности кристаллической структуры и возникновению локализованных состояний в запрещенной зоне кристалла. Изучение ВАХ облученных кристаллов в широком диапазоне приложенных внешних электрических полей и температуры позволяет сделать выводы о типах

ловушек в кристаллах, определить их важнейшие характеристики, выяснить механизм переноса заряда изучаемых соединений.

Цель настоящей работы — исследование закономерностей изменения электропроводности и ВАХ монокристаллов  $\text{TlInSe}_2$  под действием  $\gamma$ -облучения при различных температурах и электрических полях.

### Методика эксперимента

Монокристаллы выращены методом направленной кристаллизации [9], имеют тетрагональную структуру с параметрами решетки:  $a = 8,061 \text{ \AA}$ ,  $c = 6,822 \text{ \AA}$ , обладают  $p$ -типом проводимости с концентрацией дырок  $2,5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$ . Поверхности кристаллов  $\text{TlInSe}_2$  были зеркально-гладкими, что позволило использовать их для исследований без какой-либо дополнительной обработки. Омические контакты к кристаллам наносили плавлением индия к противоположным поверхностям пластин. Площадь электродов составляла  $0,2 - 0,3 \text{ мм}^2$ , а расстояние между ними равнялось  $\sim 50 - 300 \text{ мкм}$ . Были исследованы ВАХ и электропроводимость в интервалах электрических полей  $20 - 10000 \text{ В/см}$  и температур —  $120 - 320 \text{ К}$ . Все измерения образцов проводили в

экранированном вакуумном термостате, погрешность измерения тока на выходных сопротивлениях усилителя (В7-30) не превышала 10%. Облучение  $\gamma$ -квантами исследуемых структур проводили на источнике  $\text{Co}^{60}$  мощностью 1700 Р/с с энергией квантов  $E = 1,2$  МэВ. Кристаллы при облучении охлаждали парами жидкого азота, и их температура не превышала 290 К.

### Результаты исследований и обсуждение

На рис. 1 приведены ВАХ монокристалла  $\text{TlInSe}_2$  при различных дозах  $\gamma$ -облучения. Для всех образцов в интервале электрических полей  $1,2 \cdot 10 - 2 \cdot 10^5$  В/см при различных температурах ВАХ состоит из трех участков. Первый участок соответствует закону Ома ( $I \sim U^{0,9-1}$ ). На втором участке наблюдается квадратичная зависимость тока от напряжения ( $I \sim U^2$ ). На третьем участке зависимость тока от напряжения —  $I \sim U^{3-4}$ . При понижении температуры ВАХ смещается в сторону больших электрических полей. Анализ кривых проводили в рамках теории инжекционных токов в твердых телах и безактивационной проводимости [10].

Экспериментальные результаты, полученные в области электрических полей  $E < 10^2$  В/см показывают, что при облучении дозой  $2 \cdot 10^5$  рад ток, величина которого определяется концентрацией носителей заряда в исследуемых образцах, уменьшается. Это приводит к удлинению омического участка ВАХ и резкому росту в конце его, за которым следует квадратичный участок ВАХ (рис. 1, кривая 2). Согласно [10], при наличии в образце ловушек, концентрации которых превышает концентрацию основных носителей, инжектированные носители сначала захватываются ловушками, а концентрация носителей в зоне проводимости практически не изменяется. С ростом дозы облучения выше  $\Phi = 2 \cdot 10^5$  рад величина тока экспоненциально возрастает (рис. 1, кривые 3, 4), показатель степени в зависимости  $I \sim U^n$  становится  $n > 3$ . Такой характер ВАХ, по-видимому, может быть обусловлен термополевой ионизацией ловушек [11], концентрация которых зависит от дозы облучения.

На рис. 2 приведены зависимости плотности тока от толщины необлученных (кривая 1) и облученных (кривая 2) образцов при электрических полях  $1 \cdot 10^2$  В/см. Видно, что в обоих случаях плотность тока меняется по степенному закону  $j \sim L^k$ , где  $L$  — толщина образца,  $k \cong -3$ . Полученные зависимости тока от толщины свидетельствуют о том, что механизм электропроводности обусловлен монополярной инжекцией носителей заряда [10].

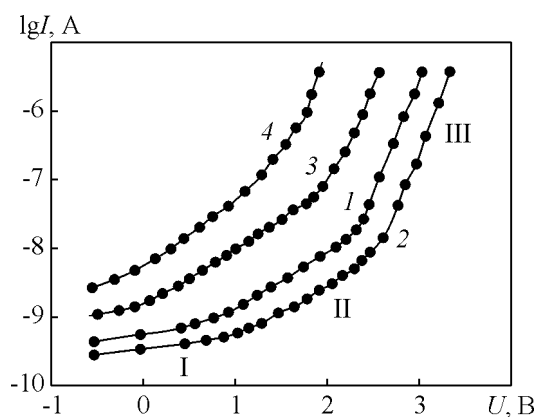


Рис. 1. ВАХ монокристалла  $\text{TlInSe}_2$  при различных дозах  $\gamma$ -облучения,  $\Phi$ , рад: 1 — 0; 2 —  $1 \cdot 10^5$ ; 3 —  $5 \cdot 10^5$ ; 4 —  $1,5 \cdot 10^7$ .

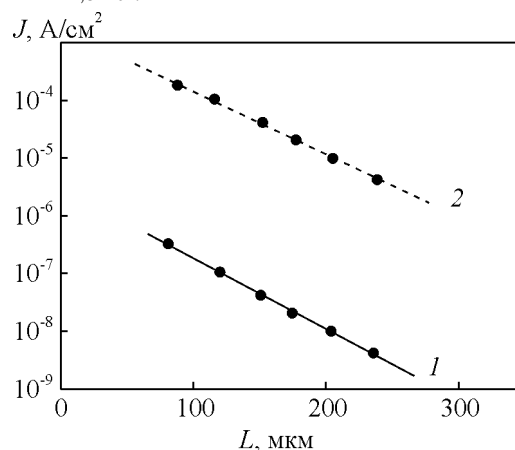


Рис. 2. Зависимость плотности тока при электрическом поле  $1 \cdot 10^2$  В/см от толщины образца: 1 — без облучения; 2 — облучение  $\gamma$ -квантами  $1 \cdot 10^6$  рад.

То есть в монокристаллах  $\text{TlInSe}_2$  облученных до  $2 \cdot 10^5$  рад перенос носителей заряда в электрических полях ( $E < 10^2$  В/см) обусловлен монополярной инжекцией и согласуется с теорией Ламперта, а при  $E > 10^2$  В/см наблюдается отклонения параметров ВАХ от теории.

В образцах, облученных дозой  $\Phi > 2 \cdot 10^5$  рад, ВАХ при  $E < 10^2$  В/см имеет протяженность линейного участка значительно меньше, по сравнению с облучением при относительно низких дозах  $\Phi < 2 \cdot 10^5$  рад. Анализ ВАХ в кристаллах  $\text{TlInSe}_2$  позволяет сказать, что радиационные дефекты, образованные при облучении кристаллов до доз  $2 \cdot 10^5$  рад, приводят к самокомпенсации кристаллов, а проводимость стремится к собственной. При  $\Phi > 2 \cdot 10^5$  рад, в результате распада нейтральных комплексов, проводимость образцов увеличивается.

На рис. 3а приведены температурные зависимости электропроводности ( $\sigma$ ) кристалла  $\text{TlInSe}_2$  до и после облучения различными дозами. Видно,

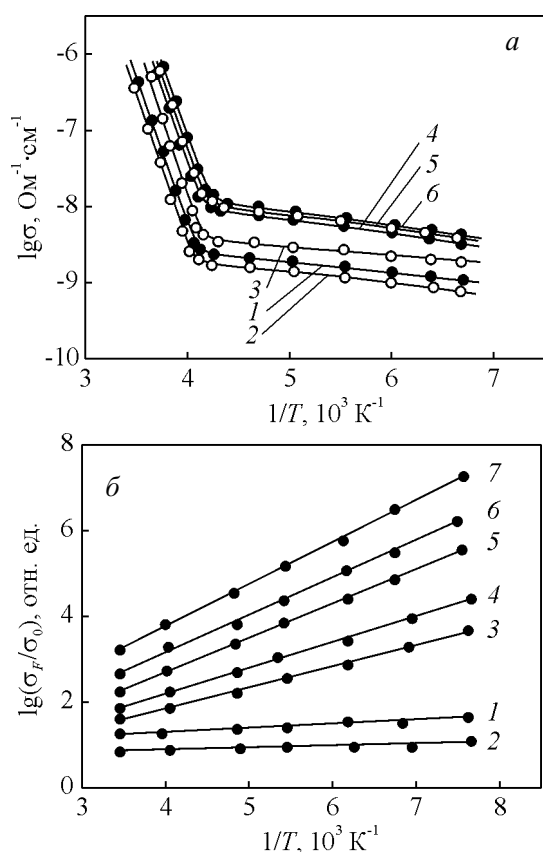


Рис. 3. Зависимости: *a* — электропроводности  $\sigma$  монокристалла  $\text{TlInSe}_2$  от обратной температуры  $1/T$ , *b* —  $\lg[\sigma_E/\sigma_0]$  от  $1/T$ , при различных дозах  $\gamma$ -облучения ( $\Phi$ , рад): 1 — 0; 2 —  $1 \cdot 10^5$ ; 3 —  $1 \cdot 10^6$ ; 4 — 0; 5 —  $1 \cdot 10^5$ ; 6 —  $1 \cdot 10^6$ , и при различных значениях электрических полей, В/см: 1 — 3 —  $10^2$ , 4 — 6 —  $4 \cdot 10^3$ .

что зависимость электропроводности от температуры  $\sigma \sim \exp(10^3/T)$ , вычисленная для омической области ВАХ, состоит из двух прямых с различными наклонами. Энергии активации уровней в  $\text{TlInSe}_2$ , определенные по этим наклонам, соответственно равны 0,17 и 0,45 эВ. При облучении дозой до  $2 \cdot 10^5$  рад электропроводность при  $E < 10^2$  В/см уменьшаются (кривая 2), а с повышением дозы облучения растет (кривая 3). Температурные зависимости электропроводности образцов при  $E > 10^2$  В/см (кривые 4 – 6) показывают, что с ростом дозы облучения величина тока увеличивается, а наклон кривых изменяется незначительно. При облучении вводятся донорные дефекты и как отмечалось в [7], уменьшение концентрации дырок при низких дозах  $\gamma$ -облучения связано с компенсацией уровня  $E_v - 0,17$  эВ, который принадлежит ионизованному состоянию собственного акцептора. Подобные результаты были получены для слоистого монокристалла  $\text{GaSe}$  [12]. Это подтверждает тот факт, что ответственным за

аномальное изменение концентрации носителей при облучении является распад нейтральных комплексов, в состав которых входит междоузельный атом катиона. ВАХ, полученные при  $E > 10^2$  В/см в области резкого роста тока после квадратичного участка, обработаны в соответствии с теорией термоэлектронной ионизации Френкеля [13].

На рис. 3б показана зависимость  $\lg[\sigma_E/\sigma_0]$  от  $1/T$  при различных значениях электрического поля и дозах облучения (где  $\sigma_E$  — электропроводность в сильных полях,  $\sigma_0$  — электропроводность при  $E = 0$ ). Видно, что с ростом электрического поля увеличивается наклон кривых. Согласно [10], между эффективной энергией активации носителей и квадратным корнем из напряженности электрического поля существует линейная зависимость. Аналогичные закономерности наблюдались и для облученных образцов при различных дозах  $\gamma$ -облучения (рис. 3б, кривые 1 – 6). Увеличение наклона кривых с ростом дозы облучения при различных электрических полях свидетельствует о том, что радиационные дефекты стимулируют миграцию и перераспределение исходных дефектов в кристаллической решетке [16], что и приводит к сужению эффективной глубины ловушки в энергетическом зазоре.

На рис. 4 приведены зависимости  $\lg \sigma$  от  $E^{1/2}$  для облученных образцов  $p\text{-TlInSe}_2$  при различных температурах в интервале электрических полей  $1,2 \cdot 10^3 - 2 \cdot 10^5$  В/см. Экспериментальные точки хорошо ложатся на прямые с различными наклонами. Наклоны этих прямых с уменьшением температуры увеличиваются, что находится в полном соответствии с теорией эффекта Пула – Френкеля и указывает на рост вероятности полевой ионизации ловушек. Температурная зависимость коэффициента Френкеля  $\beta$ , определенная из зависимости  $\sigma(E^{1/2})$  при различных дозах облучения показана на рис. 4б. Видно, что наблюдается рост  $\beta$  с уменьшением температур, и экстраполяция зависимости  $\beta \sim 10^3/T$  проходит через начало координат, что согласуется с теорией Френкеля. Следует подчеркнуть, что изменение  $\beta$  наблюдается также при облучении  $\gamma$ -квантами, что обусловлено изменением диэлектрической проницаемости от 10 до 11 [10].

Учитывая [13], определяли концентрации ловушек ( $N_t$ ) и свободных носителей ( $n$ ) до и после облучения  $\gamma$ -квантами, которые меняются  $6,4 \cdot 10^{16} - 2,04 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$  и  $2 \cdot 10^{13} - 2,7 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ , соответственно. По разности значений  $N_t$  были вычислены концентрации радиационных дефектов в монокристалле  $\text{TlInSe}_2$ . Обнаружено увеличение значений  $N_t$  при облучении, по сравнению с необлученными образцами, что наблюдалось также в [13, 14].

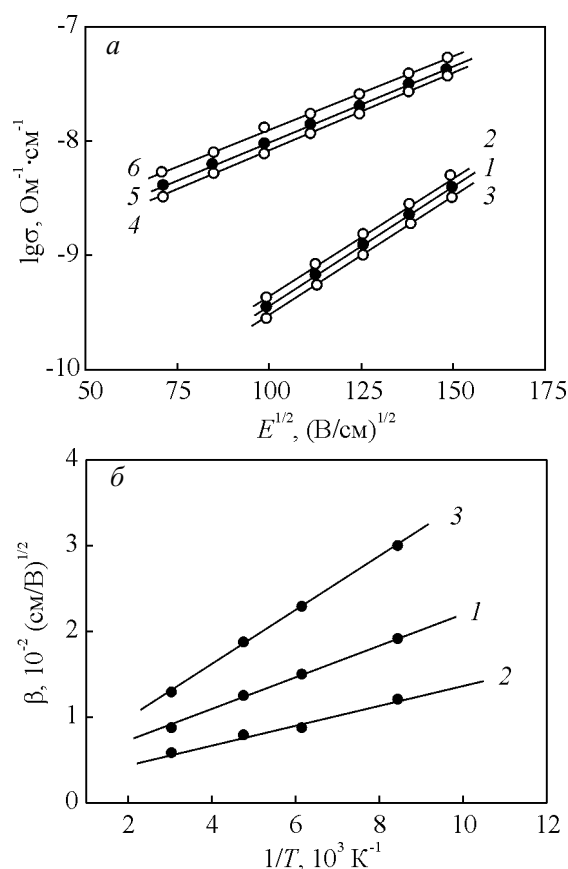


Рис. 4. а — Зависимость электропроводности  $\sigma$  монокристалла  $\text{TlInSe}_2$  от  $E^{1/2}$  при различных дозах  $\gamma$ -облучения  $\Phi$ , рад — при 120 К: 1 — 0, 2 —  $1 \cdot 10^5$ , 3 —  $5 \cdot 10^5$ , при 300 К: 4 — 0, 5 —  $1 \cdot 10^6$ , 6 —  $1,5 \cdot 10^7$ ; б — зависимость коэффициента  $\beta$  от  $10^3/T$  при различных дозах  $\gamma$ -облучения  $\Phi$ , рад: 1 — 0, 2 —  $1 \cdot 10^5$ , 3 —  $1 \cdot 10^6$ .

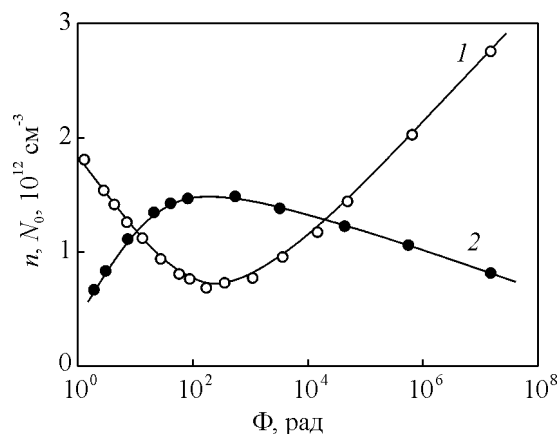


Рис. 5. Расчетная зависимость концентраций носителей зарядов  $n$  (1) и радиационных дефектов  $N_0$  (2) от дозы  $\gamma$ -облучения.

На рис. 5, для монокристалла  $\text{TlInSe}_2$ , представлена расчетная зависимость концентраций носителей зарядов —  $n$  (1) и радиационных дефектов

—  $N_0$  (2) от дозы облучения. С увеличением дозы облучения до  $2 \cdot 10^5$  рад концентрация свободных носителей постепенно снижается, затем снова повышается. Согласно [14], уменьшение концентрации дырок указывает на то, что при низких дозах облучения вводятся донорные радиационные дефекты. Рост концентрации дырок при увеличении дозы выше  $2 \cdot 10^5$  рад, вызван возрастанием концентрации  $N_a - N_d$  (где  $N_a$  — концентрация акцепторов,  $N_d$  — концентрация доноров), происходящим практически экспоненциально с дозой со скоростью  $\Delta(N_a - N_d)/\Phi = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ . Таким образом, в результате  $\gamma$ -облучения образцов  $\text{TlInSe}_2$  происходит радиационно-стимулированные процессы, связанные с активизацией процесса миграции собственных дефектов.

В облученных монокристаллах  $\text{TlInSe}$  перенос носителей заряда в электрических полях  $E < 10^2 \text{ В/см}$  обусловлен монополярной инжекцией. Резкий рост тока в сильных полях  $E > 10^2 \text{ В/см}$  связан с термополевой ионизацией локальных ловушек. Это соответствует теории Френкеля, согласно которой при ионизации центров энергия активации носителей тока уменьшается с ростом поля на величину  $2e(eE/\epsilon)^{1/2}$  (где  $e$  — заряд электрона,  $\epsilon$  — диэлектрическая проницаемость вакуума). Линейная температурная зависимость коэффициента  $\beta \sim 1/T$ , определенная из зависимости  $\lg \sigma \sim f(E)^{1/2}$  при различных температурах (рис. 4), указывает на применимость теории Френкеля для объяснения полученных данных.

Таким образом, при  $\gamma$ -облучении монокристаллов  $\text{TlInSe}_2$  происходят радиационно-стимулированные процессы, связанные с активизацией процесса миграции собственных дефектов под влиянием облучения. Это приводит к нарушению трансляционной инвариантности кристаллической структуры и изменению зарядных состояний локализованных уровней в запрещенной зоне кристалла, что создает условия для осуществления механизма термополевой ионизации. С использованием экспериментальных данных и согласно [13] определена глубина потенциальной ямы обнаруженных центров  $\sim 4,3 \cdot 10^{-6} \text{ см}$ , а также вычислена длина свободного пробега носителей тока, которая составила  $\sim 7,9 \cdot 10^{-6} \text{ см}$ . Полученные данные позволяют предположить, что в электрических полях более  $10^3 \text{ В/см}$  выполняется условия [10] для полевой ионизации ловушек.

### Заключение

Впервые исследованы ВАХ высокоомных монокристаллов  $\text{TlInSe}_2$ , облученных гамма-квантами.

Показано, что электрические свойства  $\text{TlInSe}_2$ , обусловлены ловушечными уровнями с энергиями активации 0,17 и 0,45 эВ и концентрацией  $6,4 \cdot 10^{16}$  и  $2,1 \cdot 10^{17} \text{ см}^{-3}$ . Установлено, что в сильных электрических полях происходит термополевая ионизация ловушек. Совокупность экспериментальных данных об электропроводности облученных кристаллов  $\text{TlInSe}_2$  в широком интервале температур и электрических полей хорошо согласуется с теорией Френкеля. Наблюдаемый эффект поля связан со структурными особенностями исходных дефектов, а радиационные дефекты вводимые  $\gamma$ -квантами стимулируют процесс ионизации указанных ловушек.

### Литература

1. Алексеев И.В. Гетеропереход на полупроводниках с цепочечной структурой  $\text{TlSe-TlInSe}_2$ . ФТП, 1998, т. 32, № 5, с. 588 – 590.
2. Шелег А.У., Гуртовой В.Г., Мустафаева С.Н., Керимова Э.М. Влияние ионизирующего излучения на диэлектрические характеристики монокристаллов  $\text{TlInSe}_2$  и  $\text{TlGaTe}_2$ . ФТТ, 2011, т. 53, № 3, с. 443 – 445.
3. Мустафаева С.Н. Асадов М.М., Исмаилов А.А. Влияние гамма облучения на диэлектрические свойства и проводимость монокристалла  $\text{TlInS}_2$ . ФТТ, 2009, т. 51, № 11, с. 2140 – 2145.
4. Chem Dipl., Muller D., Eulenberger G., Hahn H. Ueber ternare Thalliumchalkogenide mit Thalliumselenidstruktur. Z. Anorg. Allg. Chem., 1973, v. 398, no. 2, p. 207 – 220.
5. Guseinov G., Ramanzade A.M., Kerimova E.M., Ismailov M.Z. About a group of three-component being analogous to binary semiconductors of the  $A^{111}B^{VI}$  type. Phys. Stat. Sol., 1967, v. 22, p. K117 – K122.
6. Bradtmuller S., Kremer R., Buttcher P. Darstellung und kristallstruktur von  $\text{SnTl}_4\text{Se}_3$  mitt Anmerkung zu  $\text{TlSe}$ . Anorg. Allg. Chem., 1994, v. 620, p. 1073 – 1080.
7. Мадатов Р.С., Наджафов А.И., Тагиев Т.Б., Газанфаров М.Р. Особенности механизма токопрохождения в монокристаллах  $\text{TlInSe}_2$ . Изв. НАН Азерб. Серия физ.-мат. наук. 2010, т. 30, № 2, с. 100 – 105.
8. Kilday D.G., Niles D.W., Margaritondo G.J. Phys. Rev. B. Electronic structure of the chain chalcogenide  $\text{TlInSe}_2$ . 1987, v. 35, p. 660 – 663.
9. Алиев С.Н., Наджафов А.И., Алекперов О.З. Фото-резистивный материал. Авторское свидетельство СССР, №1199162, 1985.
10. Ламперт М., Марк П. Инжекционные токи в твердых телах. М.: Мир, 1973, 416 с.
11. Френкель Я.И. Сб. изб. трудов. М.: Издательство АН СССР, 1958, с. 2, 217.
12. Абдуллаев Г.Б., Абасова А.З., Горшков А.М., Заитов Ф.А., Стафеев В.И., Салаев Э.Ю., Шаляпина Г.М. Влияние гамма, нейтронного и электронного облучения на фоточувствительные структуры из  $\text{GaSe}$ . ФТП, 1982, т. 16, № 6, с. 1136 – 1139.
13. Tagiev O.B., Kasimova G.H. Charge Transfer en  $(\text{Ga}_2\text{S}_3)_{1-x}(\text{Eu}_2\text{O}_3)_x$  single crystals in strong electric fields. Phys. Stat. Sol. (a), 1991, v. 128, p. 167 – 174.
14. Frenkel Ya.I. On the theory of electrical breakdown in insulators and electronic semiconductors. Phys. Rev., 1938, v. 54, p. 657 – 648.
15. Мадатов Р.С., Наджафов А.И., Мамедов В.С., Мамедов М.А. Влияние  $\gamma$ -излучения на электропроводность гексагональной модификации  $\text{TlInS}_2$ . Изв. НАН Азерб. Серия физ.-мат. наук, 2008, т. 27, № 2, с. 100 – 104.
16. Вавилов В.С., Ухин Н.А. Радиационные эффекты в полупроводниках и полупроводниковых приборах. М.: Атомиздат, 1969, 191 с.

*Статья поступила 25.01.2011 г.*

**Мадатов Рагим Салим оглы** — Институт радиационных проблем НАН Азербайджана, Академия Авиации Азербайджана (г.Баку), доктор физико-математических наук, ведущий научный сотрудник. Специалист в области радиационной физики полупроводников. E-mail: msrahim@mail.ru.

**Наджафов Арзу Исрафил оглы** — Институт радиационных проблем НАН Азербайджана (г.Баку), доктор химических наук, ведущий научный сотрудник. Специалист в области материаловедения.

**Газанфаров Муслим Рагим оглы** — Институт радиационных проблем НАН Азербайджана (г.Баку), физик, аспирант.