

ДОСЛІДЖЕННЯ ПРОЦЕСІВ РОЗСІЮВАННЯ ТА ДИФУЗІЇ ЙОНІВ У МОНОКРИСТАЛІ ДИЙОДИДУ СВИНЦЮ МЕТОДОМ ПЕРЕХІДНИХ СТРУМІВ

Р.М. Пастернак

Луцький державний технічний університет, 43018 вул. Львівська, 75, Луцьк, Україна,
тел. (03322) 6-34-20, e-mail: fizik@fiz.lstu.lutsk.ua

Досліджено повільні процеси встановлення струму в монокристалі PbI_2 при поданні на нього стрибка напруги. Здійснено аналіз фізичних чинників, що впливають на ці процеси. Вказано на особливості використання методу та можливості його застосування при дослідженні йонної провідності у твердих електролітах.

Ключові слова: дийодид свинцю, розсіювання, йони, перехідний струм.

Вступ

Розробка детекторів йонізуючого випромінювання вимагає глибшого вивчення властивостей чутливих до нього матеріалів, зокрема галогенідів металів. У пропонованій роботі досліджувались властивості монокристалів PbI_2 , що є чи не єдиними твердотілими середовищами, здатними при кімнатній температурі відгукуватись на високоенергетичне випромінювання. При розробці швидкодіючих детекторів важливе значення має вплив розсіювання та дифузії йонів при перепадах напруги на кристалі.

Часова залежність струму при стрибку напруги на зразку диктується характером фізичних явищ, що відбуваються в об'ємі, на поверхні та контактах зразка і є тривалим процесом. Теорія [1] показує,

що форма змін струму обмежується показниковими функціями (експонентами з різними часами релаксації), які характеризують розсіювання носіїв заряду, степеневими функціями, що описують дифузійну частинку та складнішими функціями, що визначаються процесами поширення фронтів заряджених частинок. Якщо кожен із названих процесів вважати незалежним від інших, то результируючий струм буде їх сумою. У такому випадку апроксимація реально знятої часової залежності струму дає можливість розділити та інтерпретувати кожен із фізичних процесів окремо. У роботі показано, що використання методу перехідних струмів дозволяє отримувати результати, недоступні іншим підходам.

Методика експерименту

Зразки нелегованого дийодиду свинцю, вирощені за модифікованим методом Бріджмена-Стокбаргера, сколювались пластинками з площею поперечного перерізу $S=70 \text{ мм}^2$ та товщиною $L=0,5 \text{ мм}$. На протилежні грані пластинок наносились графітові контакти з платиновими відводами. Струм через кристал проходив уздовж осі c .

Кристал розміщувався в термостаті, де підтримувалась температура

($290 \pm 0,3$) К. Зразок знаходився в екрануючому від світла та статичних електричних полів корпусі. Послідовно зі зразком включався вимірювальний опір $R_g=1,24 \text{ Г}\Omega \pm 1\%$. Його величина вибиралась такою, щоб за порядком збігалась із опором кристалу. Це дозволяло демпфувати перехідні струми основних носіїв у кристалі.

Вимірювання та оцифрування напруги на опорі R_g проводились електрометром-мікрівольтметром В7-29, що

під'єднувався тридротовим коаксіальним фідером, опір ізоляції якого становив не менше 10 ТΩ. Послідовний додатний зворотний зв'язок, напруга якого подавалась на коаксіальний провід фідера, забезпечував багатократне збільшення ефективного опору ізоляції та зменшення вхідної ємності вимірювальної схеми до 1 пФ. За таких умов постійна часу входу вольтметра складала мілісекунду, що значно менше постійної часу підсилюва-

ча низької частоти приладу В7-29, яка виставлялась рівною 3 с.

Виміри проводились на зразках, що були попередньо закорочені та заземлені протягом доби до початку експерименту. Кожна серія результатів містила дискретні послідовні виміри, проведені протягом 6 годин: через 15 с кожен протягом перших 5 хв, через 30 с кожен протягом наступних 30 хв і через 1 хв далі. Дані заносились в комп'ютер для обробки.

Обговорення результатів вимірювань

У роботі досліджувались порівняно повільні процеси встановлення струму,

зумовленого йонною провідністю. Типовий відгук струму в монокристалі PbI₂ на стрибок напруги на ньому наведено на рис. 1.

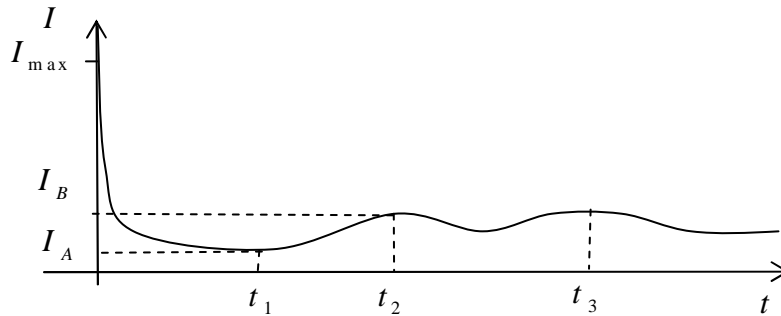


Рис. 1.

Характерною особливістю часової розгортки струму є наявність двох екстремумів при t_2 та t_3 . Теоретичний аналіз подібного зростання струму вперше дано в роботі А. Мені та Г. Ракаві, викладеної в роботі [1], де досліджувалось поширення фронту імпульсу інжекттованих основних носіїв заряду вздовж зразка. Вказаний метод став практично єдиним для визначення рухливості носіїв в ізоляторах (де традиційний метод Холла незастосовний). Ще складніше визначити рухливість йонів у твердих електролітах. Наприклад, у роботі [2] було отримано значення рухливості йонів йоду в пресованому полікристалічному зразку PbI₂ лише при температурах $T > 500$ К.

Нами показано, що в твердих електролітах наведений підхід можна використовувати для визначення рухливості не лише основних носіїв, а й йонів різних типів. Дійсно, зростання струму в часи t_2 та t_3 можна пояснити взаємною компен-

сацією об'ємних зарядів, інжекттованих різними електродами. Аналіз результатів вимірювань показав, що добутки часів t_2 та t_3 на напругу U є практично незмінним для різних напруг: $Ut_2 = 3,1 \cdot 10^5$ В·с; $Ut_3 = 5,5 \cdot 10^5$ В·с.

Як впливає із наведених у роботі [1] викладок, рухливість μ_i носіїв можна визначити з формули:

$$\mu_i = 0,79 \frac{L^2}{t_i U}. \quad (1)$$

Обчислена за виразом (1) рухливість йонів йоду у кристалі PbI₂ дорівнює $\mu_{I^-} = 6,3 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{В} \cdot \text{с}$, а свинцю $\mu_{Pb^{++}} = 3,5 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{В} \cdot \text{с}$.

У роботі [1] вказано, що пік I_B дрейфового струму може лише на 10% перевищувати встановлений струм I_A . Таким чином, на основі проведених ви-

мірювань отримуємо, що йонний струм через кристал досить значний і при температурі $T=290\text{ К}$ становить до $0,1 I_A$, тобто йонна провідність $\sigma_{I^-} < 0,1\sigma$, де $\sigma = 1,1 \cdot 10^{-9} \Omega^{-1}\text{м}^{-1}$ – провідність кристалу PbI_2 при температурі $T=290\text{ К}$. Виходячи з наведених даних, із формули

$$\sigma = ne\mu, \quad (2)$$

де e – елементарний заряд, можна обчислити концентрацію n_{I^-} йонів йоду

$$n_{I^-} = 5 \cdot 10^{20} \text{ 1/м}^3.$$

За величиною n_{I^-} із формули

$$I = \frac{U}{R} + A \left[e^{-\frac{t}{\tau_1}} + \alpha(U) e^{-\frac{t}{\tau_1}} \right] \frac{U}{R} + \beta(U) \left[e^{-\frac{t}{\tau_2}} + \alpha(U) e^{-\frac{t}{\tau_2}} \right] I_2. \quad (4)$$

Значення окремих коефіцієнтів апроксимації подано в таблиці, а залежність

коефіцієнтів α а β від напруги U наведена на рис. 2.

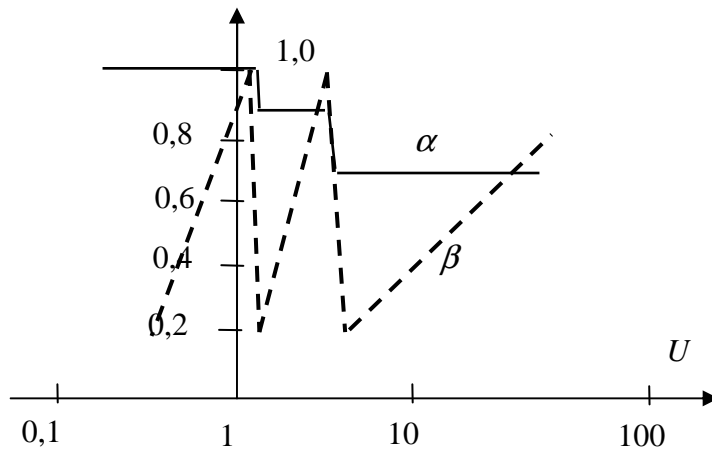


Рис. 2.

Відповідно до формули Шоклі-Ріда-Холла [1] часи релаксації τ_1 та τ_2 залежать від концентрації n_i центрів розсіювання, перерізу розсіювання σ_s та теплової швидкості v_i носіїв заряду:

$$\tau_i = \frac{1}{\sigma_s v_i n_i}. \quad (5)$$

Наявність двох пар таких часів τ_i вказує як на два типи центрів розсіювання, так і на два типи носіїв заряду, якими, як було встановлено вище, є йони йоду та свинцю.

Таблиця коефіцієнтів апроксимації.

τ_1	τ_2	γ	A	R	I_2
0,6 хв	22 хв	7,5	0,053	6,2 ГΩ	2 пА

Тому що теплові швидкості йонів йоду та свинцю відрізняються в 1,27 рази, а розсіювання відбувається на тих же центрах, отримуємо, що переріз розсіювання σ_{SI^-} для йонів йоду майже в 6 разів більший перерізу розсіювання $\sigma_{SPb^{++}}$ для йонів свинцю. Такий результат може вказувати на те, що центри розсіювання є від'ємно зарядженими наноструктурами.

Підставляючи знайдені часи релаксації в формулу (5), отримуємо концентрацію n_i центрів розсіювання першого типу $n_{i1} = 10^{15} 1/m^3$, а за формулою (3) – глибину залягання ΔW_{i1} рівня цього центру: $\Delta W_{i1} = 0,77 eV$. Концентрацію n_{i2} та глибину залягання ΔW_{i2} рівня центру розсіювання другого типу визначимо аналогічно: $n_{i2} = 3,15 \cdot 10^{13} 1/m^3$; $\Delta W_{i2} = 0,86 eV$. Наявність та значення

отриманих рівнів ΔW_{I^-} , ΔW_{i1} та ΔW_{i2} підтверджується термічними дослідженнями PbI_2 , проведеними у роботі [3]. Однакове відношення перерізів розсіювання для йонів свинцю та йоду на цих центрах та кореляція змін коефіцієнтів α та β вказують на те, що це не два різних, а один і той же центр, лише з різними енергіями збудження.

Порахована за значенням коефіцієнта α концентрація йонів Pb^{++} при напруженості електричного поля $E_1 = 2,4 \cdot 10^3 V/m$ стрибком зменшується в 1,1 раза, а при $E_2 = 11 \cdot 10^3 V/m$ – в 1,4 раза відносно концентрації при $E \rightarrow 0$. Більше того, відносна висота другого піку струму (при часі t_3) також залежить від коефіцієнта α . Зменшення висоти цього піку ми пояснюємо зменшенням концентрації йонів свинцю в кристалі при збільшенні напруги на ньому.

Висновки

Методом поширення фронту імпульсу інжектваного заряду визначено рухливості йонів свинцю та йоду в монокристалі дийодиду свинцю. Описано властивості центрів розсіювання та визначено

глибину залягання енергетичних рівнів цих центрів. Знайдено енергію дисоціації молекул у монокристалі PbI_2 . Розраховано, яка частина повного струму зумовлена йонною провідністю.

Література

1. М. Ламперт, П. Марк. *Инжекционные токи в твердых телах*. Мир, М. 416с. (1973).
2. А. Р. Lingras, G. Simkovich. Electrochemical studies on lead iodide // *Phys. Chem. Solids.*, 39, pp. 1225-1229 (1978).
3. В.К. Гасьмев, О.З. Калущ, В.М. Тарасенко, Т.В. Філюк. Дослідження електронної провідності монокристалів дийодиду свинцю в поляризаційній комірці. // *Науковий вісник ВДУ*, 7, с. 67-75, (2001).

RESEARCH OF PROCESSES OF SCATTERING AND DIFFUSION OF IONS IN LEAD IODIDE MONOCRYSTAL BY METHOD OF TRANSIENT CURRENTS

R.M. Pasternak

Lutsk state technical university, 43018 Lvivska st. 75, Lutsk, Ukraine,
tel. (03322) 6-34-20, e-mail: fizik@fiz.lstu.lutsk.ua

Abstract: Slow process of an establishment of a current in PbI_2 monocrystal is investigated at enclosing a jump of voltage on it. The analysis of physical factors which influence these processes is carried out. It is specified on feature of use of a method of transient currents and possibility of its usage in the investigation of ionic conductivity in solid-state electrolytes.

Key words: lead iodide, scattering, ions, transient current.