

3. Кузьминов Ю.С. Сегнетоелектрические кристаллы для управления лазерным излучением / Ю.С.Кузьминов. – М.: Наука, 1982. – 400с.
4. Rase D.E. Phase Equilibria in the System $BaTiO_3-TiO_2$ / D.E.Rase, R.Roy // J.Amer.Cer.Soc. – 1955. – № 38. – P.102-113.
5. Петров А.А. Выращивание объемных монокристаллов титаната бария из раствора в расплаве методом Чохральского / А.А.Петров, Б.В.Афанасьев, Н.Ф.Карпенко // VI Всесоюзн. конф. по росту кристаллов, 16-17 ноября 1985 г.: сб. тезисов докл. – Ереван: Изд. АН АССР, 1985. – С.13.
6. Lompre P. Construction d'une machine de monocristaux application an titanate de baryum / P.Lompre. // J.Appl.Cryst. –1978. – V.11. – P.332-338.

Поступила в редколлегию 15.02.2016.

УДК537.311.6

БОЧКОВА Т.М.*, к.ф.-м.н., доцент
ПЛЯКА С.М.*, к.ф.-м.н., доцент
ТРУССЕВА Н.О., к.ф.-м.н., доцент

Дніпродзержинський державний технічний університет
*Дніпропетровський національний університет ім. Олесья Гончара

ДОСЛІДЖЕННЯ ІМПЕДАНСУ ОРТОГЕРМАНАТУ ВІСМУТУ МЕТОДОМ ЕКВІВАЛЕНТНИХ СХЕМ

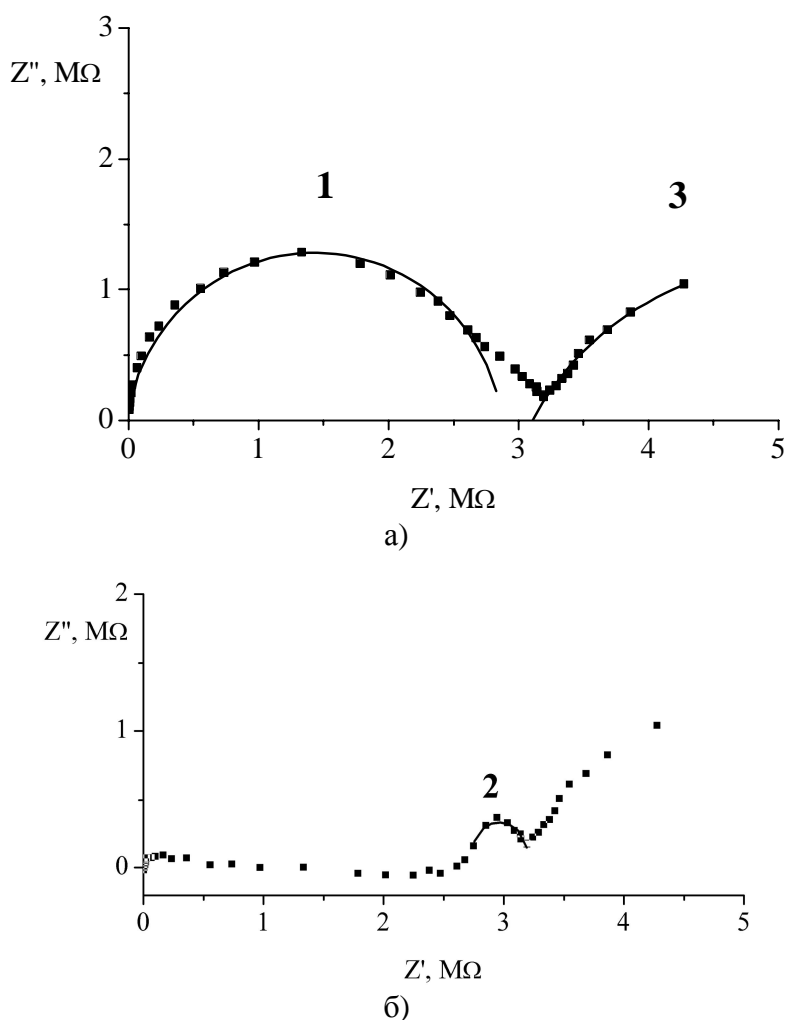
Вступ. Кристалічний ортогерманат вісмуту ($Bi_4Ge_3O_{12}$, BGO), широко відомий сцинтилятор для детектування високоенергетичного випромінювання [1], в останні роки також застосовується як фоторефрактивний матеріал [2-3]. Для підвищення ефективності запису голографічних решіток необхідно знання механізмів переносу заряду в кристалах $Bi_4Ge_3O_{12}$. Це складна задача твердотільної електроніки, оскільки ортогерманат вісмуту – високоомний напівпровідник із шириною забороненої зони $\sim 4,5$ еВ. Шляхом комплексних досліджень в роботах [4-7] встановлено, що кристали ортогерманату вісмуту за своїми електричними властивостями (високий опір, стрибковий механізм електропровідності, степеневий характер зростання провідності у змінному полі, низька рухливість носіїв заряду та її активаційне зростання, низька концентрація рухливих носіїв заряду, значний час діелектричної релаксації) належать до релаксаційних напівпровідників. Наявність подвійної інжекції носіїв заряду з платинових електродів в кристал дозволяє спостерігати формування просторових зарядів різного типу: збіднених та збагачених основними носіями заряду. До температур ~ 425 К відбувається інжекція електронів і спостерігається явище струмів, що обмежуються просторовим зарядом, вище – спостерігається інжекція дірок і процеси рекомбінації, на які впливає наявність домішок. Дуже цікавим може бути зіставлення запропонованої моделі та експериментальних даних частотних вимірювань повного комплексного опору $Z^*(\omega)$ кристала. Як відомо, графічна залежність $Z^*(\omega)$ у координатах Z', Z'' (координати Найквіста) називається годографом імпедансу або його спектром. Побудова годографів імпедансу корисна для інтерпретації його частотних залежностей. У цьому випадку аналізується відповідність виду годографа досліджуваного зразка годографу еквівалентної електричної схеми, кожен елемент якої характеризує фізичний або електрохімічний процес, що протікає в реальному досліджуваному зразку. Раніше імпеданс кристалів $Bi_4Ge_3O_{12}$ вивчався тільки для температур вище 775 К [8].

Постановка задачі. Метою даної роботи є аналіз процесів переносу заряду в

кристалах ортогерманату вісмуту шляхом імпедансної спектроскопії в інтервалі температур 300-700 К.

Результати роботи. У роботі проведено вимірювання модуля та фази повного імпедансу кристалів ортогерманату вісмуту в залежності від частоти за умови фіксованих температур. Використовувалися зразки кристалів, що вирощувалися на кафедрі фізики твердого тіла і оптоелектроніки ДНУ методом Чохральського із подвійною перекристалізацією. Електроди з платини були нанесені методом катодного розпилення. Вимірювання проводилися в зазначеному інтервалі температур та в діапазоні частот $10-10^5$ Гц за допомогою вимірювача повного імпедансу Tesla BM 507. За отриманими експериментальними даними зроблено розрахунки частотних і температурних залежностей дійсної та уявної частин комплексної провідності.

До температур ~ 500 К вимірювання ускладнені внаслідок низької провідності $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, в інтервалі 500-600 К в спектрі імпедансу спостерігається одне півколо, при більш високих температурах проявляються ще два в області менших частот. На рис.1 наведено спектр імпедансу при $T=675$ К для зразка кристала $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ товщиною 0,85 мм із платиновим електродом діаметром 3 мм.



а) точки – експериментальні значення,
суцільна лінія – теоретична апроксимація півкола 1 та півкола 3;
б) точки – різниця між експериментальним і теоретичним спектром,
суцільна лінія – теоретична апроксимація півкола 2

Рисунок 1 – Спектр імпедансу кристалу $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ за температури 675 К

В рамках методу еквівалентних схем годографу у вигляді півкола відповідає паралельний RC-ланцюжок. Згідно з частотним діапазоном назвемо височастотне півколо півколом 1, середньочастотне – півколом 2 та низькочастотне – півколом 3. Для кожного півкола буде справедливим рівняння

$$\left[Z' - \frac{(2R_1 + R_2)}{2} \right]^2 + (Z'')^2 = \left(\frac{R_2}{2} \right)^2,$$

яке описує окружність радіуса $R_2 / 2$ із центром на осі абсцис на відстані $(R_1 + R_2 / 2)$ від початку координат. За допомогою комп'ютерного аналізу для всіх трьох процесів зроблено теоретичну апроксимацію отриманих експериментальних значень та визначено R_1 , R_2 для кожного RC-ланцюжка.

Згідно з методом еквівалентних схем зразок кристала, який має спектр імпедансу у вигляді трьох півкіл, може бути представлений моделлю Войта у вигляді трьох послідовно з'єднаних паралельних RC-ланцюжків зі своїми величинами R та C . Одразу треба зауважити, що в ідеальному RC-ланцюжку опір R та ємність C є частотно-незалежними величинами, але експериментальні дані свідчать про те, що насправді їх провідність залежить від частоти. Тому використання для моделювання електрофізичних процесів, які виникають в реальних діелектриках, ідеальних RC-ланцюжків є доволі грубим наближенням.

Температурна динаміка спектрів імпедансу свідчить про складні процеси переносу заряду в кристалах ортогерманату вісмуту на змінному струмі. Як встановлено в роботах [4-7], кристали $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ можуть розглядатися як частково компенсовані напівпровідники, в яких рухливими є як електрони, так і дірки. При використанні електродів з індій-галію, срібла та платини спостерігаються процеси подвійної інжекції носіїв заряду в кристал та їх рекомбінації. Вивчення струмів монополярної інжекції в кристалах ортогерманату вісмуту показало, що електрони є основними носіями заряду до температур ~ 425 К, а вище – стають помітними процеси інжекції дірок. При високому рівні інжекції неосновних носіїв заряду процеси рекомбінації обумовлюють формування приелектродної області, збідненої основними носіями. Цей висновок зроблено в результаті виміру вольт-амперних характеристик і підтверджено дослідженням розподілу напруженості електричного поля в зразку ортогерманату вісмуту поляризаційно-оптичним методом.

Аналіз частотних залежностей компонент комплексної діелектричної проникності й процесів переносу носіїв заряду в кристалах $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ в роботі [9] показав, що в області температур до 500 К діелектричні втрати визначаються електронно-дірковою провідністю. В області температур 500- 700 К проявляються релаксаційні процеси теплової поляризації, обумовлені, скоріш за все, міграцією об'ємних зарядів поблизу контактів.

З метою ідентифікації механізмів переносу заряду, що обумовлюють появу півкіл в спектрах імпедансу ортогерманату вісмуту, зроблено спробу побудувати температурні залежності активного опору для всіх трьох півкіл та знайти енергію активації процесів E_a . Вона складає: для височастотного півкола – $0,65 \pm 0,5$ еВ, для середньочастотного та низькочастотного $\sim 0,9-1,1$ еВ. Похибка для двох останніх значно більша, тому що півкола 2, 3 не є повністю сформованими, і отримані результати мають скоріше орієнтовний характер. Збіг значення E_a для височастотного півкола з енергією активації діркової провідності, яку отримано з вимірювань на постійному струмі [5], дозволяє нам зробити припущення, що перше півколо відповідає процесу об'ємної діркової електропровідності, яка здійснюється при достатньо високих температурах. Щодо

середньочастотного півкола 2, ми вважаємо, що воно може бути обумовлене міграцією приелектродних шарів підвищеного опору, які виникають внаслідок збіднення основними носіями заряду за рахунок рекомбінації. Тоді енергія активації цього процесу може бути пов'язана із заляганням рекомбінаційних рівнів. Ідентифікація низькочастотного півкола 3 потребує подальшого дослідження. В роботі [8], присвяченій дослідженню імпедансу в ортогерманаті вісмуту у температурному інтервалі 775-975 К, спостерігається вже тільки одне сформоване півколо з енергією активації 1,4 еВ, яке автори пов'язують з об'ємною електронною провідністю з глибоких рівнів.

Висновки. Проведено вимірювання модуля та фази повного імпедансу кристалів ортогерманату вісмуту в залежності від частоти в інтервалі температур 300-700 К. Розраховано частотні і температурні залежності дійсної та уявної частини комплексного опору і побудовано в координатах Найквіста.

За допомогою комп'ютерної апроксимації отриманих годографів в рамках метода еквівалентних схем встановлено, що спектр імпедансу кристала $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ складається з трьох півкіл, що відповідає моделі зразка кристала у вигляді трьох послідовно з'єднаних паралельних RC-ланцюжків. Визначено температурні залежності активного опору, обчислено енергію активації процесів переносу заряду. Зроблено припущення, що високочастотне півколо відповідає процесу об'ємної діркової провідності, середньочастотне – обумовлене міграцією об'ємного заряду, що виникає біля контактів за рахунок збіднення основними носіями заряду внаслідок рекомбінації.

ЛІТЕРАТУРА

1. Экспортно-ориентированное производство сцинтилляционных элементов BGO / Я.В.Васильев, Г.Н.Кузнецов, Ю.Г.Стенин, В.Н.Шлегель // Материалы электронной техники. – 2001. – № 3. – С.1-8.
2. Marinova V. Light induced properties of ruthenium-doped $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ crystals / V.Marinova, Shiuian Huei Lin, Ken Yuh Hsu // J.Appl.Phys. – 2005. – Vol. 98. – P.113527(1-5).
3. Optical and holographic properties of Fe+Mn co-doped $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ crystals / V.Marinova, D.Petrova, Shiuian Huei Lin, Ken Yuh Hsu // Optics Communs. – 2008. – Vol. 281. – P.37-43.
4. Bochkova T.M. Unipolar injection currents in $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ single crystals / T.M.Bochkova, S.N.Plyaka, G.Ch.Sokolyanskii // Semiconductor Physics, Quantum Electronics and Optoelectronics. – 2003. – V. 6, № 4. – P.461-464.
5. Bochkova T.M. Charge transport in bismuth orthogermanate crystals / T.M.Bochkova, S.N.Plyaka // Semiconductor Physics, Quantum Electronics and Optoelectronics. – 2011. – V. 14, № 2. – P.170-174.
6. Бочкова Т.М. Формування просторових зарядів у кристалах $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ / Т.М.Бочкова, С.М.Пляка // Вісник ДНУ. – 2012. – Т.20. – Вип.19, № 2. – С.119-124.
7. Бочкова Т.М. Особенности процессов переноса заряда в кристаллах $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ / Т.М.Бочкова, С.Н.Пляка // Физика диэлектриков: XIII междунар. конф., 2-6 июня 2014 г.: материалы. – Санкт-Петербург, 2014. – С.1.4.
8. Macedo Z.S. Characterization of $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ Single Crystals by Impedance Spectroscopy / Z.S.Macedo, A.L.Martinez, A.K.Hernandes // Materials Research. – 2003. – Vol. 6, № 4. – P.577-581.
9. Бочкова Т.М. Тепловая поляризация в ортогерманате висмута / Т.М.Бочкова, С.Н.Пляка // Вісник ДНУ. – 2008. – Т.15. – № 2/2. – С.106-109.

Надійшла до редколегії 10.03.2016.