

Negative Photoleitfähigkeit in Ta_2O_5 -Schichten

M. HARTL und W. SCHWARZ

Institut für Technische Elektronik der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforsch. 24 a, 296—297 [1969]; eingeg. am 7. Dezember 1968)

Vor allem an CdS wurde häufig beobachtet, daß eine Photoleitfähigkeit bei Bestrahlung mit energiereichem Licht oberhalb der Bandkante durch eine langwelligere Strahlung unterhalb der Bandkante verhindert werden kann (quenching)^{1—3}. Der gleiche Effekt wurde auch bei Germanium bei tiefen Temperaturen gefunden^{4, 5}.

Neben diesem als „Quenching“ bezeichneten Effekt wurde z. B. an Germanium^{6—8} und Kupferoxidul⁹ eine sogenannte „negative“ Photoleitfähigkeit beobachtet. Dabei fällt der anfängliche Photostrom bei Bestrahlung mit Licht einer Wellenlänge (meist oberhalb oder an der Bandkante) auf einen geringeren stationären Endwert ab, der teilweise unterhalb des ursprünglichen Dunkelstroms liegt. Eine ähnliche Erscheinung wurde auch an nicht vollständig durchoxidierten Ta_2O_5 -Schichten gefunden.

1. Experimentelles

Der Aufbau der verwendeten Proben ist in Abb. 1 mit dargestellt. Durch Aufdampfen von Tantal wurden zwei 1 mm breite Ta-Elektroden im Abstand von 50μ sowie eine dazwischen liegende dünne Ta-Schicht hergestellt und anschließend in 0,1-proz. H_2SO_4 anodisch oxidiert. Die Formierspannung wurde stufenweise erhöht und jeweils 10 min konstant gehalten. Den nach jeder Oxidationsstufe zwischen den beiden Ta-Elektroden gemessenen Strom I_D zeigt ebenfalls Abb. 1. Erwartungsgemäß nimmt dieser Strom um mehrere Größenordnungen ab, sobald die dünne Ta-Schicht zwischen

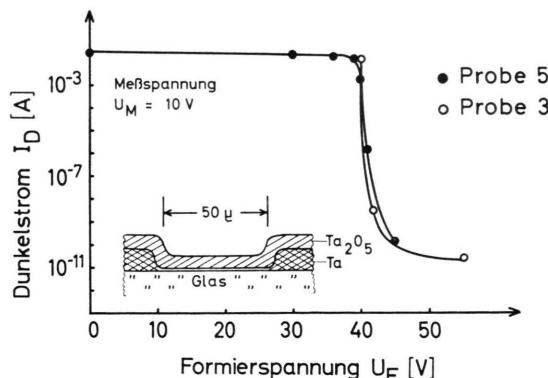


Abb. 1. Aufbau der untersuchten Proben sowie Dunkelstrom I_D als Funktion der Formierspannung U_F ; Meßspannung $U_M = 10$ V.

- ¹ R. FRERICHS, Phys. Rev. **72**, 594 [1947].
- ² E. A. TAFT u. M. H. HEBB, J. Opt. Soc. Amer. **42**, 249 [1952].
- ³ R. BUBE, Phys. Rev. **128**, 2071 [1962].
- ⁴ R. NEWMAN u. W. W. TYLER, Phys. Rev. **96**, 882 [1954].
- ⁵ W. W. TYLER, R. NEWMAN u. H. H. WOODBURY, Phys. Rev. **97**, 669 [1955]; **98**, 461 [1955].
- ⁶ R. NEWMAN, Phys. Rev. **94**, 278 [1954].

den Elektroden durchoxidiert wird. Gleichzeitig geht dabei die zuerst lineare Abhängigkeit des Dunkelstroms I_D von der Meßspannung U_M in eine etwa quadratische Abhängigkeit über. Die im folgenden untersuchten Proben 3 und 5 wurden, wie in Abb. 1 ersichtlich, verschieden stark durchoxidiert und weisen daher auch eine unterschiedliche Konzentration des Restmetalls auf. Bei allen Messungen befanden sich die Proben in einem Vakuum von etwa 10^{-2} Torr. Zur Bestimmung der Quantenausbeute wurde die Intensität des monochromatischen Lichtes mit einer Thermosäule gemessen.

2. Messungen

Einen typischen zeitlichen Verlauf des Photostroms der beiden Proben 3 und 5 bei konstanter Temperatur (90°C) und konstanter Wellenlänge (300 nm; $1 \mu\text{W}$) zeigt Abb. 2. Um Zunahme und Abnahme der Leitfähigkeit während der Belichtung, die mehr oder weniger von der Wellenlänge des verwendeten Lichtes abhängt, als Funktion der eingestrahlten Photonenenergie für

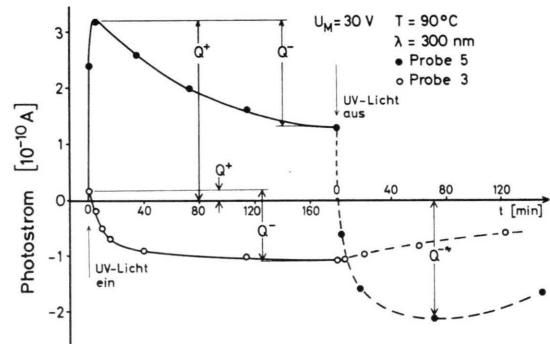


Abb. 2. Zeitlicher Verlauf des Photostroms beim Ein- und Ausschalten des monochromatischen UV-Lichtes (300 nm; $1 \mu\text{W}$); $T = 90^\circ\text{C}$; $U_M = 30$ V.

verschiedene Proben bei verschiedener Temperatur, vergleichend darstellen zu können, wurden die in Abb. 2 angegebenen Quantenausbeuten Q^+ , Q^- , Q^{-*} eingeführt. Der hier verwendete Begriff der Quantenausbeute gibt dabei die pro einfallendes Photon bei konstanter Meßspannung von 30 V in einem äußeren Stromkreis gemessene Änderung der Zahl von Elektronen an. Neben der in Abb. 3 dargestellten, aus den Anklingkurven zu gewinnenden Größe Q^- wurde auch die entsprechende Größe Q^{-*} , wie man sie aus den Abklingkurven erhält, ermittelt. Dabei zeigte sich, daß die beiden Größen sehr gut übereinstimmen. Nach mehreren Stunden stellte sich auch der ursprüngliche Dunkelstrom wieder ein. Dies zeigt, daß die hier beschriebene negative Photoleitfähigkeit auf eine reine reversible Leitfähigkeitsänderung und nicht auf eine Umbildung der Schichten

⁷ V. P. DOBREGO u. S. M. RYVKIN, Soviet Phys.-Solid State **4**, 402 [1962].

⁸ V. P. DOBREGO u. S. M. RYVKIN, Soviet Phys.-Solid State **6**, 928 [1964].

⁹ E. KLIER, Abhandl. Deutsch. Akad. Wiss. Berlin **7**, 199 [1960].



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

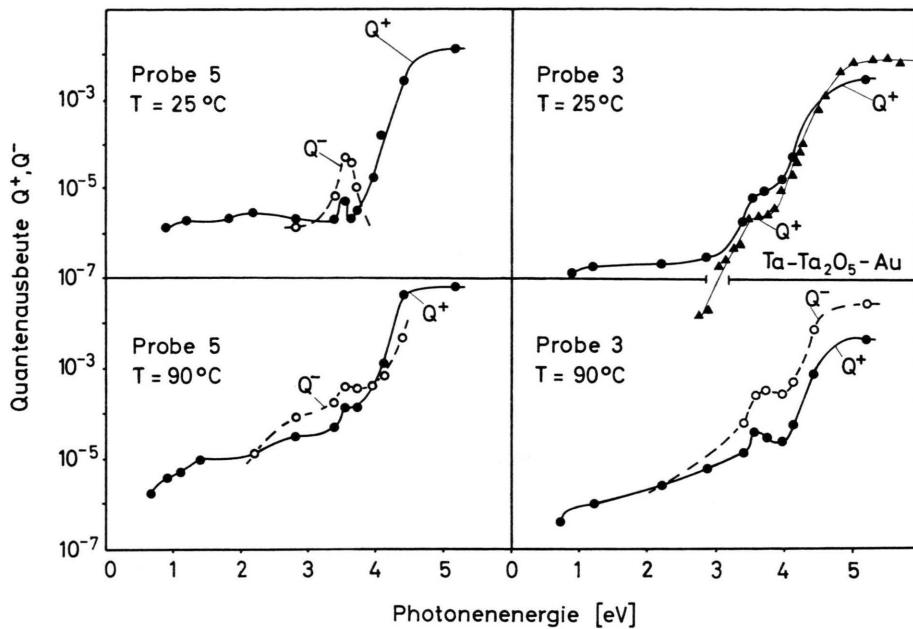


Abb. 3. Quantenausbeute Q^+ und Q^- als Funktion der Photonenenergie.

ten oder Ionenwanderung zurückzuführen ist. Abb. 3 zeigt die gemessenen Quantenausbeuten Q^+ und Q^- für die beiden Proben 3 und 5 bei zwei verschiedenen Temperaturen (25°C und 50°C) als Funktion der Photonenenergie.

3. Diskussion

Betrachtet man zuerst die Quantenausbeute Q^+ , so ist aus Abb. 3 zu ersehen, daß diese für Energien größer als $4,5\text{ eV}$ nahezu konstant bleibt. Die in diesem Bereich zu beobachtende Photoempfindlichkeit beruht auf einer reinen Band-Band-Anregung und steht in guter Übereinstimmung mit dem aus Reflexionsmessungen¹⁰ und Absorptionsmessungen^{11, 12} bekannten Bandabstand für Ta_2O_5 von etwa $4,5\text{ eV}$. Gegen kleinere Energien hin folgt erwartungsgemäß an der Bandkante eine sehr rasche Abnahme der Quantenausbeute, die jedoch bei etwa $3,5\text{ eV}$ in einen flacheren Verlauf einmündet. Für kleinere Energien als $0,7\text{ eV}$ konnte keine Photoempfindlichkeit mehr festgestellt werden ($Q^+ < 10^{-7}$). Dieser Ausläufer der Photoleitfähigkeit von $3,5$ bis $0,7\text{ eV}$ kann mit einer Störstellenphotoleitung erklärt werden. Diese Störstellen liegen demnach energetisch etwa $0,7\text{ eV}$ unterhalb des Leitungsbandes. Das Auftreten eines Maximums von Q^+ bei etwa $3,8\text{ eV}$ ($0,7\text{ eV}$ von der Bandkante entfernt) bestätigt diese energetische Lage. Übereinstimmend damit wurde eine thermische Anregungsenergie von etwa $0,7\text{ eV}$ an Proben dieser Art gefunden.

Zur Erklärung des negativen Photoeffektes (Q^-) sind 2 Modelle bekannt^{13, 14}. Im ersten Modell¹³ wird ein

Störniveau angenommen, in dem eingefangene Elektronen eine Verweilzeit besitzen, die größer ist als die Lebensdauer freier Ladungsträger. Dies führt zu einer Abnahme der Leitfähigkeit während der Belichtung. Dabei kann der Fall, daß die Quantenausbeute Q^- größer als Q^+ ist, nur bei einer Anregung mit Energien, die kleiner als der Bandabstand E_g sind, eintreten. Bei Probe 3 jedoch tritt bei 90°C bereits bei reiner Band-Band-Anregung eine Quantenausbeute Q^- auf, die größer als Q^+ ist.

Da das zweite Modell¹⁴ auch dieses Verhalten zuläßt, scheint es zutreffender zu sein. Hierin wird neben der üblichen Leitung in den Bändern noch ein zusätzlicher Leitungsmechanismus (hopping) über ein Störstellenband eingeführt. Die Größe dieser Leitfähigkeit hängt dabei vom Verhältnis der besetzten zu den freien Niveaus in diesem Störstellenband ab. Eine zusätzliche Bestrahlung mit Licht kann das Besetzungsverhältnis dieser Störstellen auch so verändern, daß eine Abnahme der Leitfähigkeit auftreten kann¹⁴⁻¹⁶.

Die Lage des Maximums von Q^- etwa $0,7\text{ eV}$ unterhalb der Bandkante zeigt, daß die gleichen Störstellen für den Verlauf von Q^+ und das Auftreten von Q^- verantwortlich sind. Die Ursache dieser Störstellen dürfte das verbliebene Restmetall sein. Dies bestätigt die Abhängigkeit der positiven und negativen Photoleitfähigkeit vom Grad des Durchoxidierens, sowie die Tatsache, daß der langwellige Ausläufer von Q^+ bei anodischen Oxidschichten auf einer verbleibenden Ta-Elektrode (sandwich-kontaktiert) nicht feststellbar ist (s. Q^+ von $\text{Ta-Ta}_2\text{O}_5\text{-Au}$ in Abb. 3).

¹⁰ L. APKER u. E. A. TAFT, Phys. Rev. **88**, 58 [1952].

¹¹ A. R. BRAY, P. W. M. JACOBS u. L. YOUNG, J. Nucl. Mater. **1**, 356 [1959].

¹² Eigene Messungen.

¹³ F. STÖCKMANN, Z. Phys. **143**, 348 [1955].

¹⁴ V. P. DOBREGO u. S. M. RYVKIN, Soviet Phys.-Solid State **6**, 928 [1964].

¹⁵ V. P. DOBREGO u. S. M. RYVKIN, Soviet Phys.-Solid State **4**, 402 [1962].

¹⁶ E. A. DAVIS, Solid-State Electron. **9**, 605 [1966].