

SIMULATION ET MODELISATION DE LA VARIATION DE LA MOBILITE DE HALL DES PHOTOELECTRONS EN FONCTION DE LA TEMPERATURE DANS LES CRISTAUX DE n-ZnSe :Zn IRRADIES AVEC DES ELECTRONS ENERGETIQUES

Reçu le 26/11/2006 – Accepté le 15/07/2007

Résumé

Dans l'intervalle de températures [77..300 K] a été mesurée la mobilité de Hall des électrons d'équilibre et des photoélectrons dans les cristaux de n-ZnSe :Zn irradiés avec un faisceau d'électrons d'énergie $E=1,3$ MeV et dont la dose d'irradiation varie entre $2,73 \cdot 10^{16}$ et $5,19 \cdot 10^{17}$ électrons/cm². Le comportement de la mobilité des photoélectrons s'explique parfaitement dans le cadre d'un modèle à deux-barrières d'un semi-conducteur inhomogène représentant une matrice faiblement ohmique contenant des inclusions fortement ohmiques (clusters). En se basant sur les théories de Shik et de Petrossiyan, une expression approximative de la mobilité de Hall a été obtenue. Il a été montré que ce modèle fonctionne parfaitement pour les petites doses d'irradiation. Lorsque la dose dépasse une certaine valeur critique ($D=2,98 \cdot 10^{17}$ électrons /cm²) le modèle considéré passe au modèle du potentiel à relief aléatoire.

Mots clés: Irradiation, ZnSe, mobilité, photoélectron, cluster, modélisation, simulation

Abstract

In the interval of temperatures [77..300 K] was measured the Hall mobility of the equilibrium electrons and photoelectrons in the n- ZnSe:Zn crystals which are irradiated by a flow of electrons with an energy of 1,3 MeV and a dose of irradiation from $2,73 \cdot 10^{16}$ to $5,19 \cdot 10^{17}$ electrons/cm². The behaviour of the mobility of the photoelectrons is satisfactorily explained by the two-barrier model of an inhomogeneous semiconductor which represents a low-resistance matrix with high resistance inclusions (clusters). Taking on the count the Shik and Petrossiyan theories, an approximate expression of the Hall mobility was obtained. It were demonstrated that this model perfectly described the Hall mobility for the small doses samples. When the dose of irradiation exceeds a certain breaking value ($D = 2,98 \cdot 10^{17}$ electrons /cm²) the considered model passes into a model of a random potential relief.

Keywords: Irradiation, ZnSe, mobility, photoelectron, cluster, modelisation, simulation

D.DJOUADI*

B. BOUGHIDEN*

A.CHELOUCHE*

D.NEDEOGLO**

* Université de Béjaia, Laboratoire de Génie de l'Environnement, Route de Targa Ouzemmour-06000- Béjaia.

** State University of Moldova, Department of Physics, A. Mateevich str. 60, Chisinau, MD-2009, Moldova

ملخص

في المجال الحراري [300K..77 K] تم قياس حركية Hall للإلكترونات في حالة التوازن و للفوتوالكترونات داخل بلورات n-ZnSe:Zn المعرضة لحزمة من الإلكترونات ذات طاقة $E=1,3$ MeV علما أن كمية الإلكترونات تتراوح بين $2,73 \cdot 10^{16}$ و $5,19 \cdot 10^{17}$ إلكترون/سم². يمكننا تفسير وضعية الفوتوالكترونات بوضوح أعمادا على نموذج "الحاجزين" في شبه ناقل غير متجانس يمثل مصفوفة ضعيفة النقالية الكهربائية تحتوي على شوائب ذات ناقلية عالية. بالاعتماد على نظريات Shik و Petrossiyan استطعنا الحصول على علاقة تقريبية لحركية Hall. لقد برهن أن هذا النموذج جد فعال في حالة الحزم الصغيرة من الأشعات. عندما تتعدى الحزمة قيمة حرجة ($D = 2,98 \cdot 10^{17}$ إلكترون/سم²) ينتقل هذا النموذج إلى نموذج الكمون ذو المظهر العشوائي.

الكلمات المفتاحية: الإشعاعات, حركية, فوتوالكترون, ZnSe, محاكاة, نموذجية

INTRODUCTION

En étudiant les propriétés électriques et photoélectriques des monocristaux de semi-conducteur ZnSe, les expérimentateurs ont toujours eu affaire à des échantillons qui, selon les conditions de leur obtention ou de leur traitement, représentent des matériaux désordonnés (semi-conducteurs fortement compensés, irradiés avec des particules lourdes possédant des clusters de défauts.....etc.) [1-4]. Il a été montré dans plusieurs travaux que la mobilité de Hall des porteurs de charge d'équilibre (dans l'obscurité) dans les monocristaux n-ZnSe désordonnés (irradiés avec des électrons énergétiques ou fortement dopés et compensés), diminue rapidement avec la diminution de la température [4-8] et ce comportement vis-à-vis de la température ne peut être expliqué par la théorie classique de la cinétique [9]. Dans ce type de matériaux et sous illumination totale apparaissent, à basses températures, de nouveaux phénomènes photoélectriques comme la relaxation à longue durée (RLD) et la conductivité résiduelle (CR) [4]. Dans ce cas, le comportement de la mobilité des photoélectrons en fonction de la température se comporte de façon différente de celle des électrons d'équilibre. Pour expliquer ces différents comportements, plusieurs modèles physiques ont été proposés (modèle du potentiel à relief aléatoire d'un semi-conducteur fortement compensé, modèle des barrières intercrystallites, modèle clustérien ou de semi-conducteur possédant des inclusions fortement ohmiques dispersées dans une matrice faiblement ohmique (modèle à deux-barrières)) [9-11].

Le présent travail consiste à étudier la mobilité des porteurs de charge d'équilibre et hors équilibre dans les monocristaux de ZnSe irradiés par des électrons énergétiques en fonction de la température dans l'intervalle [77...300K] en variant la dose de l'irradiation électronique, expliquer le comportement de la mobilité de Hall des photoélectrons dans le cadre du modèle énergétique à deux barrières, et d'en déduire, par simulation des résultats expérimentaux, la limite du fonctionnement de ce modèle liée aux hétérogénéités créées par l'irradiation électronique.

2 .FORMULATION DU MODELE

La mobilité de Hall μ_H est liée à la température T par la relation :

$$\mu_H(T) = \mu_0 \exp\left(-\frac{E_d}{kT}\right) \quad (1)$$

où E_d est la hauteur de la barrière de dérive, k est la constante de Boltzmann et μ_0 représente la mobilité de dérive. Le bombardement électronique d'un matériau semi-conducteur crée en son sein des défauts radiatifs sous forme de clusters [5,9,10]. Ce type de matériau est parfaitement décrit dans le cadre du modèle de semi-

conducteur inhomogène possédant des inclusions fortement résistantes (clusters) dispersées dans une matrice conductrice [9]. Pour ce faire, quelques approximations ont été utilisées dans ce travail :

1- A l'équilibre électrostatique, les concentrations des photoélectrons (échantillons illuminés) dans la matrice (n_2) et dans le cluster (n_1) sont liées par la relation :

$$n_2 = n_1 e^{\frac{U}{kT}} \quad (1)$$

Ces concentrations sont liées aux concentrations d'équilibre (dans l'obscurité) n_{01} et n_{02} par les

$$\text{relations : } n_1 = (n_{01} + \alpha\beta\tau_1 I) \text{ et } n_2 = (n_{02} + \alpha\beta\tau_2 I)$$

où U représente la hauteur de la barrière de dérive en présence de la lumière, τ_1 et τ_2 sont respectivement la durée de vie des électrons dans les clusters et dans la matrice, I représente l'intensité lumineuse, α le coefficient d'absorption et β le rendement quantique.

2- L'expression de U en fonction de U_0 (hauteur de la barrière de dérive dans l'obscurité) est donnée, dans le cas où la dégénérescence des porteurs excédentaires est négligeable ($\tau_1 = \tau_2$), par :

$$U = U_0 - kT \ln \left[\frac{1 + i e^{\frac{U_0}{kT}}}{1 + i} \right] \quad (2)$$

$$\text{Avec } i = \frac{\alpha\beta I \tau_1}{n_{01}} \quad (3)$$

Shik et Petrossiyan [9] ont montré que la distribution de l'énergie potentielle dans la barrière de Schottky au voisinage de l'inclusion est donnée par la relation :

$$E(x) = \left(\sqrt{U} - \sqrt{Ax} \right)^2 \quad (4)$$

où $A = \frac{2\pi n_{01} e^2}{\chi}$ et x représente la distance entre le

point considéré et la barrière.

En outre, ces auteurs ont confirmé que lorsque la distance moyenne entre les clusters est égale à L , la valeur de la barrière de dérive E_d est égale à $E(L)$.

En tenant compte de ces approximations, l'équation (1) se réécrit comme suit :

$$\mu_H(T) = \mu_0 \exp \left\{ - \left[\sqrt{\frac{U_0}{kT} - \ln \left(\frac{1 + ie^{kT}}{1 + i} \right)} - \sqrt{\frac{\lambda U_0}{kT}} \right]^2 \right\} \quad (5)$$

3- PROCEDURE EXPERIMENTALE

Les cristaux de ZnSe utilisés dans ce travail sont de type n et préalablement recuits dans un bain de Zn pendant 100 heures à la température 950°C. Les échantillons ayant les mêmes caractéristiques électriques à la température ambiante ont été choisis pour être irradiés par des électrons rapides d'énergie 1.3 MeV. Des échantillons de sélénure de zinc mécaniquement polis et ayant des formes de parallélépipèdes de dimensions 7x2x1 mm³ ont été préparés. Avant l'irradiation la résistivité électrique des échantillons investis varie, à la température ambiante, entre 1 et 10 Ω cm. La densité du flux de particules sur la surface des échantillons ne dépassait pas 2 10¹⁵ électrons/cm².min, ce qui exclut l'échauffement du matériau. La dose des radiations varie de 2.73 10¹⁶ à 5.2 10¹⁷ électrons par cm². Entre 77 K et 300 K ont été mesurés et étudiés les coefficients cinétiques (coefficients de Hall et la conductivité électrique) dans l'obscurité et avec illumination avec une lumière spectrale. Ensuite, avec la formule donnant la mobilité de Hall μ_H en fonction de la constante de Hall $R_H(T)$ et de la conductivité électrique $\sigma(T)$ i.e $(\mu_H(T) = R_H \cdot \sigma)$, la mobilité de Hall a été calculée pour ces échantillons dans tout l'intervalle de températures considéré dans les conditions d'équilibre (obscurité) et de non équilibre (illuminés). Les principaux coefficients cinétiques des échantillons investis sont résumés dans le tableau 1 et les courbes de la dépendance de la mobilité des électrons d'équilibre et des photoélectrons en fonction de la température thermodynamique sont illustrées sur la figure 1 [12].

Pour les doses de l'irradiation, l'allure de la variation de la mobilité en fonction de la température reste pratiquement inchangée dans l'obscurité et en présence de la lumière. On enregistre seulement un abaissement des valeurs de la mobilité dans tout l'intervalle des températures considérées [77- 300 K]. Quand la dose atteint D = 1.09 10¹⁷ électrons/cm² (D₃), la croissance monotone de la mobilité de Hall dans l'obscurité est modifiée. La mobilité à l'illumination dépend très fortement de la température au dessous de 120 K qui est liée au mécanisme de diffusion sur les phonons et spécialement sur les ions d'impuretés quand on approche la température de l'azote liquide. L'augmentation ultérieure de la dose conduit à un décroissement en exponentiel de la mobilité des électrons d'équilibre et

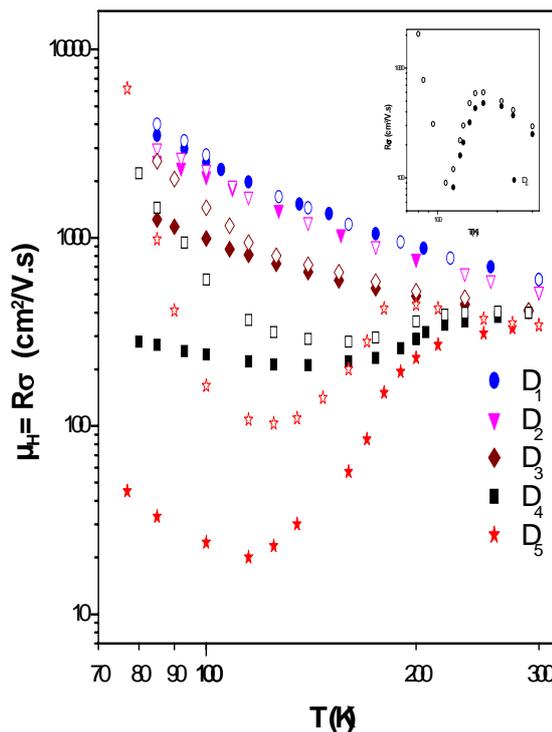


Figure 1. Dépendance de la mobilité de Hall avec la température dans le ZnSe irradié par des électrons d'énergie E = 1.3 MeV. En présence de la lumière (symboles vides) et dans l'obscurité symboles pleins). Les différentes doses sont, en électrons /cm²: D₁ = 0 ; D₂ = 2.73 10¹⁶; D₃ = 1.09 10¹⁷; D₄ = 1.64 10¹⁷; D₅ = 2.98 10¹⁷ et dans l'insertion D₆ = 5.19 10¹⁷.

passer par un minimum au voisinage de T = 140K (courbes 4 et 5). Le minimum se déplace vers les faibles valeurs de la température à cause de l'augmentation de la contribution de la diffusion sur les ions d'impuretés avec l'augmentation de la dose d'irradiation. La dépendance de la mobilité des électrons hors équilibre est similaire sauf, qu'aux basses températures, le minimum est suivi par une variation brutale de la mobilité (courbes 4, 5 et 6).

4- SIMULATION DE LA MOBILITE DE HALL DES PHOTOELECTRONS

Pour affirmer les approximations proposées, les dérivées de la mobilité de Hall par rapport à la température (équation 5) ont été calculées. Pour les faibles doses de l'irradiation la dérivée ne peut pas s'annuler, ce qui montre que la mobilité de Hall des photoélectrons augmente de façon monotone avec la diminution de la température. Pour des doses intermédiaires, on constate qu'elle admet un minimum au voisinage de la température

$$T_{\min} = \frac{\lambda U_0}{k \ln\left(\frac{1+i}{i}\right)} \quad (6)$$

Pour les doses intermédiaires pour lesquelles apparaît le minimum l'équation (5) peut être réécrite sous la forme suivante :

$$\mu_H(T) = \mu_0 \exp\left\{\ln\left(\frac{i}{1+i}\right) + 2\sqrt{-\lambda U_0 \ln\left(\frac{i}{1+i}\right)\frac{1}{T} - \frac{\lambda U_0}{T}}\right\} \quad (7)$$

qui peut être exprimée en faisant un changement de variable sous la forme :

$$\mu_H(x) = \exp(a + bx + cx^2) \quad (8)$$

$$\text{avec : } x = \frac{1}{\sqrt{T}}, \quad a = \ln \frac{\mu_0 i}{1+i},$$

$$b = 2\sqrt{-\lambda U_0 \ln\left(\frac{i}{1+i}\right)} \text{ et } c = -\lambda U_0$$

Les résultats de la simulation de la mobilité des photoélectrons dans les échantillons irradiés dont la dose varie entre 0 et $2.98 \cdot 10^{17}$ électrons/cm² et illuminés par une lumière spectrale d'intensité $I=4000$ lux sont représentés dans le figure 2.

Une parfaite superposition des courbes théoriques et expérimentales a été observée, en particulier pour les faibles doses et les doses intermédiaires (échantillons 1, 2, 3 et 4). Ces résultats montrent que le modèle choisi décrit parfaitement le comportement de la mobilité des photoélectrons en fonction de la température dans les échantillons investis. Le bombardement électronique crée dans ces cristaux, pour des doses bien déterminées, des agrégats de défauts représentés par des régions désordonnées fortement ohmiques et dispersées dans une matrice faiblement ohmique. La différence des résistivités [9] entre les deux milieux engendre des barrières de Schottky. Les résultats obtenus sur le ZnSe irradié montrent que nos hypothèses sont valables non seulement pour les cristaux de séléniure de zinc mais pour tous les semi-conducteurs de la famille A²B⁶. Les valeurs des coefficients a, b et c dans l'expression de la mobilité des photoélectrons, qui sont fonction de tous les paramètres physiques, et obtenues par la simulation des résultats expérimentaux, sont données dans le tableau 2 (échantillons 1, 2, 3 et 4). Les valeurs du paramètre b pour les autres échantillons sont négatives et, par conséquent, elles ne sont pas représentées. Ceci montre que le modèle choisi (inclusions fortement ohmiques dans une matrice uniformément conductrice) n'est valide que pour des doses inférieures à $3 \cdot 10^{17}$ électrons/cm². Au-delà de cette dose, les défauts créés par l'irradiation électronique sont de concentration importante et distribués de façon aléatoire dans tout le volume de l'échantillon. Le comportement de la mobilité de Hall des

photoélectrons dans ces échantillons s'explique dans le cadre d'un autre modèle à semi-conducteurs. D'autre part, l'expression de la mobilité de Hall des électrons d'équilibre ($I = 0$), donnée par l'équation (1), se réécrit comme suit :

$$\mu_H(T) = \mu_0 \exp(-E_d/kT) = \mu_0 \exp\left\{-\frac{1}{kT}(\sqrt{U_0} - \sqrt{\lambda U_0})^2\right\} \quad (9)$$

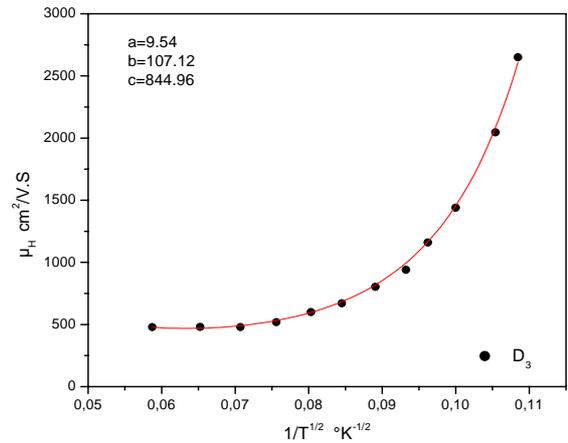
Les résultats de la simulation montrent que le modèle considéré peut fonctionner parfaitement uniquement pour les petites doses de l'irradiation électronique (figure 3).

Au delà de $D = 3 \cdot 10^{17}$ électrons/cm², une divergence entre les valeurs expérimentales et les courbes de simulation a été observée. Ceci est aussi un facteur qui limite la validité du modèle clustérien en fonction de la dose de l'irradiation dans les monocristaux n-ZnSe irradiés par des électrons rapides. En outre, ont été estimées les valeurs de la mobilité de dérive des électrons d'équilibre et de la hauteur de la barrière de dérive dans les échantillons dans lesquels le modèle clustérien décrit parfaitement le comportement de la mobilité de Hall des porteurs de charge vis-à-vis de la température.

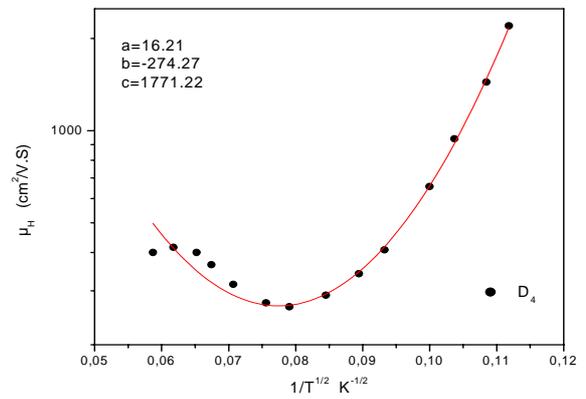
5. DISCUSSIONS ET INTERPRETATIONS

Les trois coefficients a, b et c obéissent à une certaine régularité en fonction de la dose de l'irradiation. Le paramètre b (négatif) de l'échantillon 4, est lié à la dose limite de transition du modèle de semi-conducteur à deux-barrières vers un autre modèle de semi-conducteurs. Au-delà de cette dose, les défauts créés par le bombardement électronique (qui ont un effet compensateur dans les semi-conducteurs) se rapprochent rapidement et le modèle proposé n'est plus valide. Les électrons qui participent à la conduction sont ceux qui se trouvent dans le champ de potentiel créé par ces impuretés. Le comportement de la mobilité de Hall pour les photoélectrons en fonction de la température dans ces échantillons est analogue à celui dans les cristaux de ce même matériau mais dopés avec des atomes accepteurs de cuivre [4,13]. C'est ce qui nous a poussé à admettre qu'aux fortes doses de l'irradiation fonctionne le modèle de potentiel symétrique à relief aléatoire engendrées par les impuretés non contrôlables et distribuées de façon arbitraire dans tout le volume de l'échantillon. De point de vue énergétique, le fonctionnement du modèle du semi-conducteur à deux barrière et sa transition vers un autre modèle s'explique, à notre avis, de la manière suivante : L'irradiation des cristaux de ZnSe crée des inclusions fortement isolantes dans la matrice uniformément conductrice. Pour des faibles doses de l'irradiation les paires électrons-trous, générées par la lumière spectrale, sont séparées par le champ des barrières énergétiques (de dérive et de recombinaison). Les trous émergent et se localisent dans les bosses du potentiel, neutralisent la charge du cluster et font diminuer la hauteur et les dimensions de ces bosses. Pour leur part, les électrons, qui sont spatialement séparés

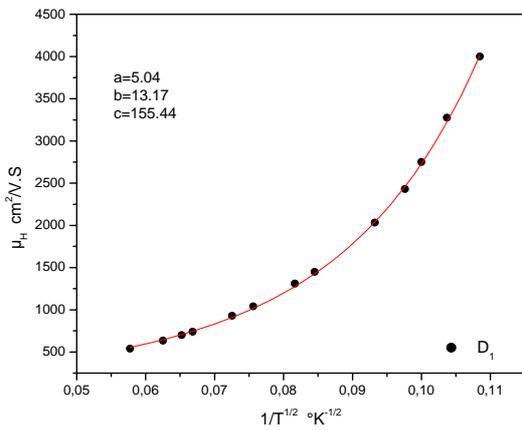
des trous, se déplacent librement dans la bande de conduction à travers la matrice faiblement ohmique du cristal et « dégrossissent » les régions du cristal occupées par les bosses qui sont opaques aux électrons. La diminution du volume des bosses pendant l'illumination signifie la diminution de l'hétérogénéité du cristal et conduit à l'accroissement de la conductivité électrique et de la mobilité de Hall. Dans ce cas, la concentration des électrons libres dans la matrice faiblement ohmique reste pratiquement invariable. L'augmentation de la mobilité de Hall des électrons, représentant la cause principale de l'accroissement de la conductivité électrique pendant l'illumination de l'échantillon, s'explique par la diminution du volume de la matrice suite à l'occupation d'une certaine partie par les espaces périphériques des RCE dans lesquelles la diffusion à travers les ions d'impuretés est très forte. Le potentiel créé par les défauts radiatifs est, pour les faibles doses d'irradiation, supposé asymétrique (la hauteur des « bosses » est supérieure à la profondeur des « queues ») et pour des doses élevées, le relief de ce potentiel devient symétrique et le modèle clustérien passe à un autre modèle de semi-conducteur.



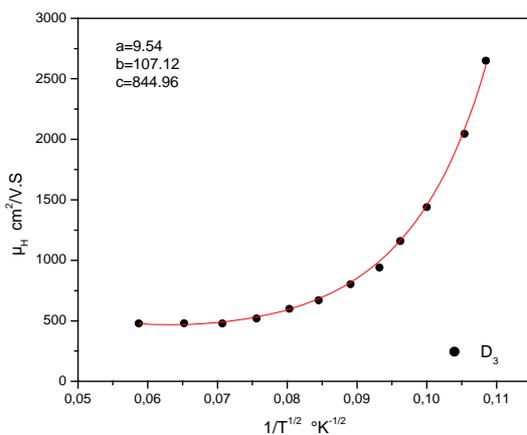
(3)



(4)

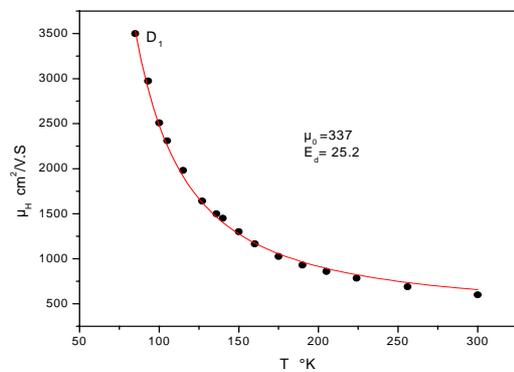


(1)

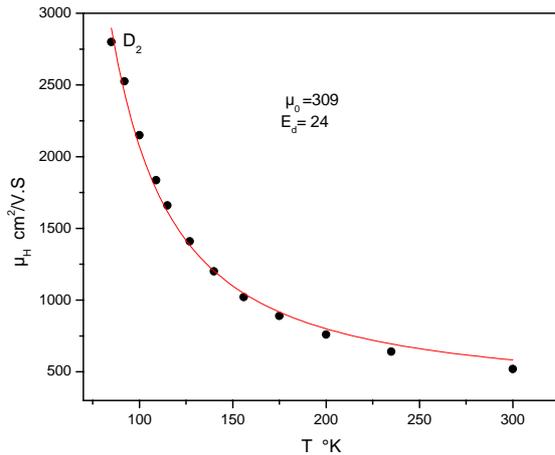


(2)

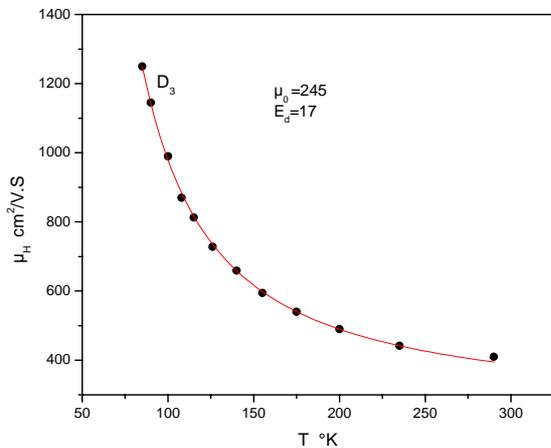
Figure 2. Résultats de la simulation des courbes $\mu_H(T)$ en présence de la lumière pour les échantillons 1, 2, 3 et 4



(1)



(2)



(3)

Figure 3. Résultats de la simulation des courbes $\mu_H(T)$ dans l'obscurité pour les doses D1 ,D2 et D3. La mobilité de dérive μ_0 (cm²/V.S) et la barrière de dérive E_d (meV) sont déterminés pour ces échantillons .

CONCLUSION

Dans ce travail a été établie, en se servant des théories de Shik et de Petrossiyan, une relation approximative donnant la mobilité des photoélectrons en fonction de la température et d'autres paramètres physiques. Cette relation est étroitement liée au modèle de semi-conducteur à inclusions fortement ohmiques dans une matrice faiblement ohmique. Les résultats expérimentaux obtenus en étudiant le comportement de la mobilité de Hall en fonction de la température pour les photoélectrons et les électrons d'équilibre dans les cristaux semi-conducteurs de sélénium de zinc irradiés sont utilisés pour justifier le choix de ce modèle. Les résultats de la simulation ont montré une très bonne corrélation entre la pratique et la théorie du modèle proposé en particulier

pour les faibles doses de l'irradiation. Les défauts radiatifs créés par le bombardement électronique ont un rôle compensateur et se rassemblent en agrégats caractérisant des régions désordonnées fortement ohmiques. Avec l'augmentation de la dose, le volume des inclusions augmente au détriment de celui de la matrice et la distance moyenne entre les inclusions diminue.. Pour les doses inférieures à $3 \cdot 10^{17}$ électrons/cm², le modèle clustérien explique parfaitement les particularités de la mobilité de Hall pour les photoélectrons et en particulier dans la région des basses températures dans laquelle la diffusion à travers les ions d'impuretés est la plus dominante. Au-delà de cette dose le modèle n'est plus valide et prend place un autre modèle plus général. Les résultats de simulation, obtenus sur les cristaux n-ZnSe irradiés, présentent une bonne corrélation ce qui justifie le choix du modèle pour expliquer l'allure de la mobilité de Hall des photoélectrons en fonction de la température.

REFERENCES

- [1]- Aven M.,Segal B. Phys.Rev, V32, N°10 pp- 81-91, (1963).
- [2]- Kireev P., La physique des semiconducteurs. Ed.Mir. Moscou , (1975).
- [3]- Rogach A.L ,Materials Science and Engineering, B69-70, pp-435-440, (2000)
- [4]- Djouadi D. Études des propriétés électriques et photoélectriques des cristaux désordonnés de sélénium de zinc possédant une mémoire optique, thèse de Doctorat, Kichinev, (1990).
- [5]- Shik A.Y, Fizik. i Tech.Poloprovodn, T11.V9,pp-1758-1764, (1977).
- [6]- Kasiyan V.A., Nedeoglo D.D., Nedeoglo N.D. Phys.Rev V10, N°13,pp-(1998).
- [7]- Blajku A.L. Djouadi , D.,Kasiyan V.A, Nedeoglo D.D., Fiz. i Tekhn. Polopro. V.26, N°5, pp-900-905 (1992).
- [8]- Blajku A.L, Djouadi D., Kasiyan V.A., Nedeoglo D.D., Phy. Stat. Sol (a) ,V148, N°2 ,pp-521-531, (1995).
- [9]- Petrosiyan S.G., Shik A.Y., Fizik. i Tech.Poloprovodn., T.10, N° 199, pp-1258-1265 (1976).
- [10]- Shik A.Y. , Fizik. i Tech.Poloprovodn. T11.V9,pp-1758-1764, (1977).
- [11]- Bezlyundnyi S.V., Kolesnikov N.V.,Shik A.Y, Fizik. i Tech.Poloprovodn. T11,V.10 pp-1906 -1915, (1977).
- [12]- Boughiden B., Modélisation et simulation de la mobilité de Hall pour les photoélectrons dans les cristaux de sélénium de zinc irradiés par des électrons rapides, Mémoire de Magister, 2004, Université de Béjaia.
- [13]- Bolboshenko V.Z., Djouadi D.,Kasiyan V.A. Nedeoglo D.D., Phys. Stat.Sol. (a) V.12, N°133,pp-121-136 (1992).