

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ УКРАЇНИ  
ОДЕСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ  
ім.І.І.МЕЧНИКОВА

На правах рукопису

ВЛІНЬСЬКА ЛЮДМИЛА МИКОЛАЇВНА

УТВОРЕННЯ ПРОСТОРОВОГО ЗАРЯДУ ТА ВИНИКНЕННЯ ЕРС  
У ПЛІВКАХ ОКСИДУ АЛЮМІНІЮ ПРИ ЇХ ВЗАЄМОДІЇ  
З ВОДОЮ

01.04.10 - Фізика напівпровідників та діелектриків

А В Т О Р Е Ф Е Р А Т

дисертації на здобуття наукового ступеня  
кандидата фізико-математичних наук

Одеса - 1997



Дисертація є рукопис

Робота виконана на кафедрі експериментальної фізики та НДЛ-3  
Одеського державного університету ім.І.І.Мечнікова

Науковий керівник: кандидат фізико-математичних наук, доцент  
Міхо Володимир Вячеславович

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, професор  
Вікулін Іван Михайлович,  
кандидат фізико-математичних наук, доцент  
Солошенко Віктор Іванович

Провідна організація: Херсонський державний технічний університет

Захист дисертації відбудеться 10 червня 1997 р. о 14<sup>00</sup>  
годині на засіданні Спеціалізованої Вченої Ради Д 05. 01. 07  
Одеського державного університету ім. І.І.Мечнікова (270100,  
м.Одеса, вул. Пастера, 27, ВФА).

З дисертацією можна ознайомитись в науковій бібліотеці Одеського  
державного університету.

Автореферат розіслано 7 мая 1997 р.

Вчений секретар

Спеціалізованої Вченої Ради Д 05. 01. 07

кандидат фізико-математичних наук,

доцент

Федчук О.П.

АВ 37.743

## ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

**Актуальність теми.** Останнім часом посилилась увага до вивчення плівок оксидів металів, одержаних електрохімічним методом, в зв'язку з використанням їх в МДП-структурах, конденсаторах, датчиках вологомірів, у вигляді електроізоляційних і декоративних покриттів, а також каталізаторів багатьох хімічних реакцій. Електрохімічний метод одержання оксидних плівок має ряд переваг порівняно з іншими методами виготовлення оксидних плівок (катодне розпилення, термічне окислення). Цей метод дозволяє в єдиному технологічному циклі регулювати як товщину оксидного шару в бажаних межах, так і об'ємні властивості оксидів. Незважаючи на широке застосування анодних оксидних плівок на алюмінії в різноманітних областях техніки, багато функціональних властивостей цих плівок залишаються маловивченими і до кінця нез'ясованими

Для анодних оксидних плівок багатьох металів характерно явище формування просторового заряду. Наявність просторового заряду в цих плівках, природа якого залишається досі спірною і неоднозначною, вказує на можливість застосування оксидних плівок алюмінію у вигляді анодоелектретів, а також джерел малих струмів. Сучасний стан проблеми просторового заряду в цих плівках, незважаючи на існуючий в літературі чималий експериментальний матеріал, вимагає подальшого розвитку, як в науковому, так і в прикладному аспектах. Так, в зв'язку із необхідністю розширення функціональних можливостей мікроелектронних приладів на основі оксидних плівок алюмінію виникає питання про з'ясування конкретного механізму утворення просторового заряду в таких плівках.. З іншого боку, на основі знання цього механізму ставиться задача про створення джерел струму.

Мета та завдання. В роботах по дослідженню електретних характеристик анодних оксидних плівок алюмінію висловлено припущення, що поляризаційний стан зумовлений інжекцією електронів і захвату їх на уловлювачі в приповерхневому шарі оксиду в процесі його росту чи при прикладенні зовнішньої поляризуючої напруги. Проте, існує низка експериментальних фактів, що не вкладаються в рамки існуючих механізмів утворення і руйнування поляризаційного стану. Так, зміна ємності електролюмінесцентної чарунки на основі оксиду алюмінію при різній вологості, утворення поляризаційного стану в оксидних плівках алюмінію в атмосфері, що містить водяну пару, і цілий ряд інших явищ не можуть бути пояснені тільки утворенням об'ємного заряду в процесі росту чи поляризації плівки.

З іншого боку, накопичений до цього часу теоретичний і експериментальний матеріал свідчить про те, що процеси адсорбції і каталізу, які відбуваються за участю поверхневих станів оксидних плівок, мають великий вплив на явища, що відбуваються на поверхні і в об'ємі цих плівок. Показано, що при поміщенні структури  $Al-Al_2O_3-SnO_2$  в атмосферу, що містить водяну пару, в ній виникає ЕРС. Виникнення ЕРС в структурі, що розглядається полягає в наступному. В процесі адсорбції і дифузії молекул води в глибокій оксидній плівці алюмінію вони можуть потрапляти на нерівномірно розподілені в цій плівці каталітично активні центри. При взаємодії молекул води з такими центрами можливо протікання реакції дисоціації. Внаслідок відмінності коефіцієнтів дифузії продуктів дисоціації і концентраційного надлишку їх біля каталітично активних центрів виникають дифузійні струми в бік менших концентрацій, тобто від  $SnO_2$  до алюмінієвого електроду, тим самим відбувається просторове розділення продуктів дисоціації, що призводить до виникнення різниці потенціалів між електродами з алюмінію і  $SnO_2$ . В результаті цього іони  $H^+$  локалізуються поблизу алюмінієвого електроду, при цьому алюмінієвий електрод завжди заряджається позитивно, а  $SnO_2$  -

від'ємно. Проте наші подальші дослідження показали, що при певних умовах полярність електродів змінюється на протилежну. Крім того, було встановлено, що величина різниці потенціалів між електродами може досягати 0.4-0.8 В, що не може бути пояснено на підставі запропонованих раніше уявлень.

Метою данної роботи було дослідження електронних та іонних процесів, які відбуваються у електрохімічно отриманих плівках оксиду алюмінію при їх взаємодії з водяною парою, а також уточнення механізму виникнення ЕРС в них, що враховує утворення просторового заряду, зв'язаного на уловлювачах.

Досягнення цієї мети обумовлювало вирішення ряду завдань :

- установити вплив густини водяної пари і товщини оксидної плівки на знак і величину ЕРС і з'ясувати причини, що впливають на появу різних знаків полярності алюмінієвого електрода,
- з'ясувати участь уловлювачів в утворенні просторового заряду,
- визначити концентрації вільних електронів в оксидних плівках алюмінію і електронів, зв'язаних на уловлювачах,
- вивчити кінетику ЕРС, що виникає в оксидних плівках алюмінію в атмосфері водяної пари,
- побудувати фізичну модель, яка описує механізм виникнення ЕРС в оксидних плівках алюмінію.

**Наукова новизна роботи.** В ході виконання поставленого завдання вперше встановлено, що в процесі генерації ЕРС оксидними плівками алюмінію в присутності водяної пари можуть приймати участь як протони, так і електрони. Установлена і вивчена залежність ЕРС від товщини досліджуваних плівок.

Установлено, що за величину ЕРС в оксидних плівках алюмінію відповідальні уловлювачі біографічного походження. Визначена їх концентрація і енергетична глибина залягання.

Методом струму Холу визначена величина рухливості вільних електронів в оксидній плівці алюмінію. Установлено, що розсіяння електронів, в основному, відбувається на теплових коливаннях ґратки.

Вивчена кінетика зростання і спаду ЕРС в оксидних плівках алюмінію. Запропонована математична модель, що описує криві кінетики ЕРС, яка добре узгоджується з експериментально одержаними кривими.

**Практична значимість.** На підставі проведених досліджень запропоновано метод одержання джерела малих струмів з підвищеними значеннями питомої ємності і питомої енергії. Основні характеристики розробленого джерела струму наведені в інформаційному аркуші про передовий виробничий досвід.

#### **Основні положення, що виносяться на захист.**

Результати досліджень, одержаних в цій роботі, дозволяють сформулювати наступні основні положення, що виносяться на захист :

1. Виявлені залежності знаку і величини ЕРС, що спостерігається в оксидних плівках алюмінію, від густини водяної пари.
2. Запропонований механізм виникнення ЕРС, що ураховує утворення просторового заряду, зв'язаного на уловлювачах.
3. Експериментальні результати дослідження кінетики росту і спаду ЕРС і просторового заряду в оксидних плівках алюмінію в атмосфері водяної пари.
4. Запропонована модель для кінетичних процесів утворення та порушення просторового заряду у структурах, які досліджуються.

5. Експериментальні результати дослідження ЕРС та струму в системі  $Al-Al_2O_3$ -електроліт.
6. Можливість створення джерел струму з великою питомою ємністю на основі оксидних плівок алюмінію.

**Апробація роботи.** Основні положення роботи і окремі її результати доповідалися на IV і V Міжнародних конференціях по фізиці і технології тонких плівок "МКФТТП -IV" і "МКФТТП -V" (Івано-Франківськ, 1993, 1995), Міжнародній конференції по хімічним сенсорам (Рим, 1994).

**Публікації:** Основні результати дисертаційної роботи відбиті в 12 публікаціях.

**Структура і обсяг дисертації.** Дисертація складається із вступу, п'яти глав, підсумкового розділу, висновків та списку цитованої літератури. Загальний обсяг роботи складає 135 сторінки, включаючи 99 сторінок машинописного тексту, 26 малюнків та список цитованої літератури, який налічує 112 найменувань.

## **ЗМІСТ РОБОТИ**

**У вступі** обґрунтована актуальність теми, сформульована мета дисертаційної роботи і завдання, які необхідно вирішити для досягнення поставленої цілі, наукова новизна і основні положення що виносяться на захист.

**В першій главі** проводиться аналіз літературних даних по дослідженню фізико-хімічних властивостей плівок оксиду алюмінію. Розглянуто механізм утворення поляризаційного стану, що виникає внаслідок інжекції електронів і захвату їх на уловлювачі в приповерхневому шарі оксиду в процесі його електрохімічного окислення або поляризації при поданні зовнішньої напруги.

Показано, що фізико-хімічні і електрофізичні властивості структури на основі плівок оксиду алюмінію залежать від технології їх виготовлення, а також визначаються характером їх взаємодії з навколишнім середовищем. На поверхні оксидної плівки в присутності парів в навколишній атмосфері відбуваються процеси, що приводять до запасення світлосуми, екзоелектронної емісії, а також було спостережено появу різниці потенціалів між електродами структури  $Al-Al_2O_3-SnO_2$ . Існуючі в літературі відомості не дають чіткого уявлення про виникнення ЕРС і струму. Мало вивчено вплив на величину і знак ЕРС зовнішніх чинників, таких як густина водяної пари і температура, а також вплив товщини плівки. Внаслідок недостатньої кількості експериментальних даних немає остаточного уявлення про механізм виникнення ЕРС.

На підставі проведеного аналізу сформульовано мету і завдання дисертаційної роботи.

Друга глава присвячена опису досліджень впливу водяної пари на електрофізичні властивості плівок оксиду алюмінію, проведених для уточнення механізму виникнення ЕРС в них.

Оксидні плівки алюмінію одержувалися електрохімічним окисленням алюмінієвої фольги в водному розчині щавлевої кислоти. Другим контактом служив шар  $SnO_2$ , нанесений на оксидну плівку методом піролізу  $SnCl_4$ . Товщина оксидних плівок залежно від величини напруги і тривалості формовки варіювала в інтервалі 0.3÷5.0 мкм. Опір зразків при площі контактів  $1 \text{ см}^2$  складав  $10^5 \div 10^6$  Ом. Приведена схема установки для вивчення впливу водяної пари в навколишній атмосфері на електрофізичні властивості оксидних плівок алюмінію. В атмосфері водяної пари виникала ЕРС, величина якої досягала 0.4-0.8 В.

Показано, що при малих густинах водяної пари ( $< 7 \text{ г/м}^3$ ) алюмінієвий електрод набуває позитивний потенціал, причому з зростанням густини водяної пари величина ЕРС спочатку росте, після цього починає спадати, відбувається зміна знаку ЕРС і алюмінієвий

електрод набуває негативного потенціалу. Така залежність знаку потенціалу на алюмінієвому електроді від густини водяної пари пояснюється нами наступним чином. При відносно малих густинах водяної пари її молекули утворюють на поверхні мікропор оксиду алюмінію поблизу електрода із  $SnO_2$  протонодонорні центри, що легко віддають іони  $H^+$ . Внаслідок переважної дифузії цих іонів на алюмінієвому електроді виникає позитивний потенціал. При великих густинах водяної пари її молекули на поверхні мікропор оксиду утворюють донорні центри. В цьому випадку алюмінієвий електрод внаслідок переважної дифузії до нього електронів набуває негативний потенціал. Таким чином, в виникненні ЕРС приймають участь як протони, так і електрони.

Оскільки спостережене значення ЕРС 0.4-0.8 В неможливо пояснити нерівномірністю розподілу концентрації вільних носіїв заряду, можна припустити, що виникнення ЕРС зумовлено утворенням просторового заряду. Так як виникнення ЕРС відбувається тільки в присутності водяної пари, то з метою уточнення механізму формування ЕРС предстало інтерес більш докладне вивчення питання про виникнення просторового заряду в оксидній плівці алюмінію при її взаємодії з водяною парою.

В зв'язку з припущенням про виникнення просторового заряду при взаємодії плівки з водяною парою цікавими видаються дослідження частотних залежностей ємності і провідності. Виміри проводилися в інтервалі частот від 30 до  $10^5$  Гц і показали, що зі збільшенням частоти опір і ємність падають. Установлено, що при низьких частотах (до 400 Гц) частотні залежності ємності і опору, в основному, визначаються дрейфом протонів, а при більш високих частотах – дрейфом електронів.

Вивчена термостимульована провідність (ТСП) і ємність (ТСЕ) плівок оксиду алюмінію, попередньо витриманих в атмосфері водяної пари, при двох частотах прикладеної напруги 100 Гц і 10000 Гц. Криві ТСП і ТСЕ при нагріванні мають ряд максимумів, причому

максимуми, що спостерігаються на частоті 100 Гц, відповідні температурі  $\sim 340$  К, щезають на частоті 10000 Гц. Наступні максимуми на кривих ТСП і ТСЕ спостерігалися як на частоті 100 Гц, так і на частоті 10000 Гц, причому максимуми ТСП і ТСЕ співпадають. При повторному нагріванні раніше прогрітих і охолоджених в вакуумі зразків піків ТСП і ТСЕ не спостерігалося. Наявність піків при температурі  $\sim 340$  К свідчить про відповідальність за їх появу протонів, що термічно вивільнюються з протонодонорних центрів. Наступні максимуми, що спостерігаються на двох частотах, пов'язані з термічним визволенням електронів із центрів, утворених іонами  $OH^-$  і локалізованими на поверхні мікропор оксидної плівки.

Вивчена температурна залежність струму, що генерується в оксидних плівках алюмінію при двох значеннях густини водяної пари. Температурне поведіння струму пояснюється на підставі результатів вимірів ТСП і ТСЕ і частотних залежностей ємності і опору.

В третій главі представлені результати визначення основних параметрів оксидних плівок алюмінію і пропонується механізм виникнення ЕРС в них.

По струму розряду джерела струму — досліджуваної структури, вважаючи, що весь заряд зосереджений на уловлювачах, визначена концентрація уловлювачів, що склала величину  $6 \times 10^{20} \text{ м}^{-3}$ . Оскільки наявність уловлювачів повинна також відбитися і на протіканні електричного струму в плівці при прикладенні зовнішньої напруги, нами проведені виміри вольтамперних характеристик (ВАХ). Виміри проводилися в інтервалі напруг  $0.1-130$  В в вакуумі. При нарузі до 4 В спостерігалась лінійна залежність струму від напруги. При подальшому збільшенні прикладеної напруги ця залежність підкоряється закону  $I \sim V^2$ , а після цього при нарузі  $\sim 80$  В спостерігається різке зростання струму на два порядки величини. Така поведінка струму від напруги типова для протікання струмів, обмежених просторовим зарядом при наявності уловлювачів. Концентрація уловлювачів, що обмежують протікання струму,

визначалася по величині напруги  $V_{пл}$ , відповідної граничному заповненню уловлювачів, і товщині зразка і складала  $6 \times 10^{21} \text{ м}^3$ . Відміна в значеннях концентрацій уловлювачів, знайдених двома методами, очевидно, пов'язана з тією обставиною, що концентрація уловлювачів визначена з вимірів струму розряду, отримана за умови просторового розділення носіїв заряду по товщині плівки. Оскільки основна частина електронів знаходиться біля електроду з  $\text{SnO}_2$ , то заповнення ними уловлювачів поблизу алюмінієвого електроду незначне і не всі електрони беруть участь у вимірі струму розряду. Тому концентрація уловлювачів, що визначається по струму розряду, є заниженою у порівнянні з цією же величиною, одержаною з вимірів ВАХ. Енергетична глибина залягання уловлювачів, яка оцінювалася з ВАХ, складала величину  $\sim 0.3 \text{ eV}$ .

Методом струму Холла визначені рухливість і концентрація носіїв струму. Встановлено, що носіями заряду є електрони, рухливість яких складає величину  $(3.0 \div 5.7) \times 10^{-3} \text{ м}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ , а концентрація —  $1.3 \times 10^{13} \text{ м}^{-3}$ . Вивчена температурна поведінка рухливості електронів в досліджуваних плівках. Установлено, що розсіяння носіїв відбувається, в основному, на теплових коливаннях ґратки.

Розглянуто розподіл потенціалу по товщині оксидної плівки з урахуванням формування просторового заряду внаслідок захвату уловлювачами носіїв струму. Оскільки концентрація вільних електронів в плівці дуже мала у порівнянні з концентрацією електронів, зв'язаних на уловлювачах, стаціонарний розподіл концентрації електронів по товщині плівки визначається розподілом концентрації електронів, зв'язаних на уловлювачах. Внаслідок процесів адсорбції і дисоціації молекул води на поверхні оксидної плівки поблизу електроду з  $\text{SnO}_2$  формуються центри, утворені за участю іонів  $\text{OH}^-$ , спроможні виконувати функції донорів. Електрони, які звільнюються з цих центрів, дифундують від контакту  $\text{SnO}_2$  в глиб оксидної плівки, потрапляють на розміщені в її об'ємі уловлювачі і, накопичуючись на них, утворюють негативний просторовий заряд. На

підставі вище висловленого запропонована математична модель, яка описує утворення просторового заряду і виникнення ЕРС, а також описує її залежність від товщини плівки. Проведені виміри залежності величини ЕРС від товщини показали добре узгодження експериментальних і розрахункових результатів.

В четвертій главі приведені результати дослідження кінетики ЕРС, що виникає в оксидних плівках алюмінію при їх взаємодії з водяною парою. Оскільки метою роботи є уточнення механізму виникнення ЕРС, необхідно також з'ясувати кінетику встановлення ЕРС в присутності водяної пари. Показано, що кінетика ЕРС визначається, по-перше, кінетикою адсорбційно-десорбційних процесів, які відбуваються на поверхні плівки при різкій зміні густини водяної пари в навколишній атмосфері, по-друге, кінетикою електронних і іонних процесів, що відбуваються безпосередньо в об'ємі плівки при незмінній густині водяної пари.

Кінетика ЕРС, яка обумовлена адсорбційно-десорбційними процесами, що відбуваються на поверхні плівки, описується ленгмюровським механізмом.

Вивчено вплив температури, густини водяної пари, зовнішнього нагрузочного опору і товщини плівки на кінетику встановлення ЕРС, обумовлену електронно-іонними процесами, що відбуваються в об'ємі оксидної плівки. При негативній полярності алюмінієвого електроду у випадку, коли ЕРС зумовлена дифузиею електронів, стала часу процесу наростання ЕРС  $\tau_n$  складає 0.01-0.10 с. При позитивній полярності алюмінієвого електроду у випадку, коли ЕРС зумовлена дифузиею іонів  $H^+$ ,  $\tau_n$  складає 0.02-0.20 с. З підвищенням густини водяної пари, а також із збільшенням опору зовнішнього навантаження стала часу збільшується. Вона росте і при збільшенні товщини оксидної плівки. При відносно малих густинах водяної пари, в тому випадку, коли алюмінієвий електрод при кімнатній температурі набуває позитивного потенціалу, значення ЕРС монотонно росте з підвищенням температури, а  $\tau_n$  при цьому падає. При відносно великих густинах

водяної пари, коли алюмінієвий електрод при кімнатній температурі набуває негативного потенціалу, ЕРС з підвищенням температури зменшується, поблизу 400 К змінює знак і після цього монотонно зростає. При цьому величина  $\tau_n$  спочатку зменшується, а після цього при зміні знаку ЕРС скачком зростає і далі з ростом температури знову зменшується.

Одержано аналітичний вираз для сталої часу процесу наростання ЕРС, з якого витікає, що  $\tau_n$  визначається, в основному, дифузійними процесами, які відбуваються в оксидній плівці.

Проведено також вивчення кінетики спаду ЕРС. Стала часу процесу спаду ЕРС  $\tau_c$  не залежить від густини водяної пари в навколишній атмосфері, росте з збільшенням навантажувального опору і зменшується з підвищенням температури. Величина  $\tau_c$ , також як і  $\tau_n$ , змінюється в межах 0.01-0.10 с.

Наведені експериментальні результати добре описуються запропонованою моделлю для кінетичних процесів, що відбуваються в оксидних плівках алюмінію.

В п'ятій главі встановлено виникнення ЕРС при контакті оксидних плівок алюмінію із електролітом. Показано, що уявлення про формування просторового заряду та ЕРС в структурах  $Al-Al_2O_3-SnO_2$  справедливі також і для структур  $Al-Al_2O_3$ -електроліт. Як електроліт використався 3% розчин солі амонію сірчанокислого, а як протиелектрод – графітовий стрижень. Величина ЕРС в системі  $Al-Al_2O_3$ -електроліт складала 0.1-0.6 В. Із порівняння загальної кількості електрики, яка пройшла через систему, і кількості електрики, що пройшла за рахунок електролізу зроблено висновок, що електроліз не є основним процесом, відповідальним за протікання струму.

Виникнення ЕРС і струму в цьому випадку, в основному, зумовлено тим, що позитивно заряджені іони, які надходять з електроліту, призводять до зарядження поверхні плівки, що прилягає до електроліту. Негативно заряджені іони забезпечують надходження до цієї плівки електронів, які після цього дифундують до алюмінієвого

електроду, внаслідок чого він набуває негативного потенціалу. Нейтральні радикали, які утворюються при цьому, покидають поверхню плівки, уможливаючи надходження до неї інших іонів, що забезпечує стаціонарний характер протікання струму при замиканні ланцюга через навантажувальний опір.

Незважаючи на те, що величина ЕРС, що виникає в структурах  $Al-Al_2O_3$ -електроліт така ж, як і в структурах  $Al-Al_2O_3-SnO_2$ , що знаходяться в атмосфері водяної пари, внутрішні опори їх істотно різні і, тому струми, що можна зняти при роботі цих структур на порядок вище, чим для структур  $Al-Al_2O_3-SnO_2$ . Показано, що системи, які розглядаються, можуть бути використані як первинні елементи джерел струму, при цьому питома ємність і питома енергія значно перевищують ці параметри відомих джерел струму.

В підсумковій частині сформульовані основні результати дисертаційної роботи, обговорюється її практична значимість і перспективи подальших досліджень по даній темі.

## ОСНОВНІ ВИСНОВКИ ДО РОБОТИ

1. При взаємодії плівок оксиду алюмінію з водяною парою в структурах  $Al-Al_2O_3-SnO_2$  виникає ЕРС, обумовлена участю в її виникненні як протонів, так і електронів. При відносно малих густинах водяної пари утворення ЕРС пов'язане з дифузиею протонів в оксидній плівці, а при відносно великих густинах водяної пари – з дифузиею електронів.

2. Утворення просторового заряду і ЕРС в оксидних плівках алюмінію відбувається внаслідок адсорбції і дисоціації молекул води на каталітично активних центрах мікропор оксиду, формування поблизу електрода з  $SnO_2$  центрів з участю іонів  $OH^-$ , спроможних виконувати функції донорів. Електрони, які звільнюються з цих центрів, дифундують від контакту  $SnO_2$  в глиб оксидної плівки,

потрапляють на розміщені в її об'ємі уловлювачі і, накопичуючись на них, утворюють негативний просторовий заряд.

3. Величина ЕРС, що виникає в плівках оксиду алюмінію в присутності водяної пари, в основному, визначається густиною водяної пари в навколишній атмосфері і концентрацією уловлювачів біографічного походження в цих плівках.

4. Зі збільшенням товщини плівки ЕРС росте до деякої стаціонарної величини  $\sim 0.4-0.8$  В, яка залежить від густини водяної пари в навколишній атмосфері, і описується з урахуванням розподілу концентрації зв'язаних на уловлювачах електронів.

5. Кінетика ЕРС в оксидних плівках алюмінію, що виникає в присутності водяної пари, визначається, по-перше, кінетикою адсорбційно-десорбційних процесів, які відбуваються на поверхні плівки, по-друге, кінетикою електронних і іонних процесів, що відбуваються безпосередньо в об'ємі оксидної плівки. Кінетика наростання і спаду ЕРС, що обумовлена адсорбційно-десорбційними процесами, описується ленгмюровським механізмом. Кінетика наростання і спаду ЕРС, що обумовлена електронно-іонними процесами, які відбуваються в об'ємі оксидної плівки, визначається густиною водяної пари, температурою, величиною навантажувального опору і товщиною плівки.

6. Наведені експериментальні результати свідчать про можливість створення на основі плівок оксиду алюмінію джерел струму з великою питомою ємністю.

## ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ДИСЕРТАЦІЇ ОПУБЛКОВАНІ В РОБОТАХ

1. Михо В.В., Колебошин В.Я., Семенюк Л.Н., Денисова Г.М. Изучение поведения ЭДС, генерируемой пленками оксиди алюминия в атмосфере водородосодержащих веществ // Материалы 4

Международ. конф. по физике и технологии тонких пленок. Ивано-Франковск. 1993. ч.2, с.314.

2. Михо В.В., Колебошин В.Я., Семенюк Л.Н., Денисова Г.М. Эффект памяти в оксидных пленках алюминия и тантала // Материалы 4 Международ. конф. по физике и технологии тонких пленок. Ивано-Франковск. 1993. ч.2, с.365.

3. Mikho V.V., Kobileshin V.Yu., Semenyuk L.N., Denisova G.M. Ammonia, sulphur hydrogen and peroxide hydrogen luminescence sensors in water solution // Technical Digest of Fifth International Meeting on Chemical Sensors. Roma, Italy, 1994.-P.1029-1031.

4. Михо В.В., Колебошин В.Я., Семенюк Л.Н. Изучение процесса установления ЭДС в оксидных пленках алюминия при взаимодействии с парами воды // Материалы 5 Международ. конф. по физике и технологии тонких пленок. Ивано-Франковск. 1995. ч.1, с.140.

5. Михо В.В., Колебошин В.Я., Семенюк Л.Н. Генерація ЕРС у плівках оксиду алюмінію // Укр. физич. журнал. 1995.-Т.40.-N.11-12.-С.1209-1211.

6. Михо В.В., Семенюк Л.Н. Источник тока на основе пленки оксида алюминия // Информ. лист. о передовом производств. опыте. Одесса. 1996, N.267-96.

7. Михо В.В., Колебошин В.Я., Семенюк Л.Н. ЭДС, возникающая в оксидных пленках алюминия в атмосфере паров воды // Фотоэлектроника. 1996.-N.6.-С.56-58.

8. Семенюк Л.Н. Электрофизические свойства пленок оксида алюминия // Неограниченные материалы. 1996.-Т.32.-N.12. -С.1500-1501.

9. Михо В.В., Семенюк Л.Н. Формирование пространственного заряда в оксидных пленках алюминия // Микроэлектроника. 1996. - Т.25.-N.6. -С.442-444.

10. Михо В.В., Семенюк Л.Н. Кинетика ЭДС в оксидных пленках алюминия, возникающая в атмосфере паров воды // Радиотехника и электроника. 1996.-Т.41.-N.9.-С.1140-1142.

11. Михо В.В., Колебошин В.Я., Семенюк Л.Н. Устройство для определения концентрации аммака в газовых смесях // Информ лист. о передовом производ. опыте. Одесса. 1996. N.290-96.

12. Mikho V.V., Vilinskaya L.N. Source of current based on oxide aluminium films // IIIrd NEXUSPAN Workshop on Microsystems in Enveronmental Monitoring. 13-14 December. 1996, UZKOE Hotel, Moscow, p.61.

Вилинская Л.Н. Образование пространственного заряда и возникновение ЭДС в пленках оксида алюминия при их взаимодействии с водой. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.10 - Физика полупроводников и диэлектриков. Одесский государственный университет им.И.И.Мечникова, Одесса, 1997.

Диссертация содержит результаты: 12 работ, опубликованных в реферированных журналах и 5 работ, опубликованных в тезисах международных конференций. В диссертации исследуются структуры на основе пленок оксида алюминия при их взаимодействии с водой. Изучаются зависимости величины и знака ЭДС, возникающей при взаимодействии исследуемых структур с водой, от плотности паров воды и толщины оксидной пленки алюминия. Рассмотрение основывается на предположении об образовании пространственного заряда, связанного на ловушках биографического происхождения. Предложен механизм, описывающий образование пространственного заряда и возникновение ЭДС, а также математическая модель кинетических процессов, происходящих в оксидных пленках алюминия. Проведено всестороннее сравнение с экспериментальными данными.

Ключові слова: просторовий заряд, електрорушійна сила, плівки оксиду алюмінію, дифузія, дисоціація, густина волянсі пари, каталітично активні центри, уловлювачи біографічного походження.

#### ANNOTATION

The thesis contains the results of: 12 papers published in refereed journals and 5 abstracts of international conferences. The structures based on aluminium oxide films by interaction with the water are investigated. The value and sign of EMF, arising by interaction these structures with the water, dependencies of water vapours density and oxide film thickness are studied. The consideration is based on the assumption about space charge formation bonded on the traps of biographical nature. The mechanism described the space charge formation and EMF appearing, and mathematical model of kinetical processes in aluminium oxide films are proposed. The comprehensive comparison with experimental data have been done.

Key words: space charge, electromoving force, aluminium oxide films, diffusion, dissociation, water vapours density, catalitically active centres, traps of biographical nature.

ВНТТ СВА

Підп. до друку 5.05.97р. формат 60x84 1/16.

Умовн. друк. арк. 1,0. Тираж 100

-----

Ризограф УВВЛ, Одеса, Пушкінська 37

AB 37.743