

УДК 621.315.592

Радиационные эффекты в монокристаллах $TlGaSe_2$

С. Н. Мустафаева, М. М. Асадов, А. А. Исмаилов

Изучено влияние γ -облучения на диэлектрические свойства и ас-проводимость поперек слоев монокристаллов $TlGaSe_2$ из разных технологических партий в частотной области $5 \cdot 10^4$ — $3,5 \cdot 10^7$ Гц. Показано, что γ -облучение монокристаллов $TlGaSe_2$ дозами $3 \cdot 10^4$ и $2,25 \cdot 10^6$ рад приводит к уменьшению диэлектрической проницаемости, а также изменяет природу диэлектрических потерь. В γ -облученных монокристаллах $TlGaSe_2$ установлен прыжковый характер ас-проводимости вблизи уровня Ферми и оценены плотность и энергетический разброс локализованных в окрестности уровня Ферми состояний, а также среднее время и расстояние прыжков.

PACS: 71.20.Nr, 72.20.Ee, 72.20.Fr, 72.20.Jv, 72.30.+q

Ключевые слова: монокристалл, γ -облучение, ас-проводимость, диэлектрическая проницаемость, диэлектрические потери, локализованные состояния, расстояние прыжков, частотная дисперсия.

Введение

Монокристаллы $TlGaSe_2$, обладающие слоистой структурой, в силу последнего обстоятельства проявляют склонность к политипизму. В работе [1] рентгенографическим методом были обнаружены различные политипные модификации кристаллов $TlGaSe_2$. Образцы $TlGaSe_2$, представляющие собой различные политипные модификации, отличаются по своим физическим параметрам. Одним из факторов, позволяющих управлять физическими свойствами монокристаллов $TlGaSe_2$, является легирование их металлическими примесями.

В [2] приведены результаты изучения влияния частичного замещения галлия железом на диэлектрические свойства монокристаллов $TlGaSe_2$ в переменных электрических полях. Было обнаружено, что такое замещение приводит к уменьшению диэлектрической проницаемости ϵ кристаллов и увеличению тангенса угла диэлектрических потерь $\tan \delta$.

В данной работе приведены результаты изучения влияния γ -облучения на диэлектрические свойства и проводимость монокристаллов $TlGaSe_2$ на переменном токе (ас-проводимость).

Экспериментальная часть

Диэлектрические измерения монокристаллов $TlGaSe_2$ на переменном токе проведены резонансным методом с помощью куметра TESLA BM 560 (подробнее методику см. в [2]). Измерения проводились на разных частотах из диапазона $f = 5 \cdot 10^4$ — $3,5 \cdot 10^7$ Гц. Объектами исследования служили образцы из монокристаллов $TlGaSe_2$, взятых из двух технологических партий, т. е. из разных слитков. В дальнейшем эти образцы будут обозначены под номерами 1 и 2. Удельное темновое сопротивление образца № 1 на постоянном токе составляло $\rho_{dc} = 8 \cdot 10^9$ Ом·см, а образца № 2 — $4 \cdot 10^8$ Ом·см при $T = 300$ К.

Диэлектрические свойства измерены в направлении, перпендикулярном слоям монокристаллов $TlGaSe_2$. В качестве электродов использована серебряная паста. Толщина монокристаллических образцов из $TlGaSe_2$ составляла от 100 до 280 мкм. Все измерения проведены при комнатной температуре.

Облучение образцов проводилось на радиационной химической установке непрерывного действия РХУНД-20000 от источника Co^{60} . Энергия γ -квантов составляла 1,25 МэВ. Доза облучения накапливалась путем последовательных выдержек в одном и том же образце и составляла $3 \cdot 10^4$ и $2,25 \cdot 10^6$ рад. Диэлектрические измерения образцов проводились после каждого облучения.

Мустафаева Солмаз Наримановна, главный научный сотрудник.

Исмаилов Алекпер Алидейдар оглы, ведущий научный сотрудник.

Институт физики НАН Азербайджана.

Азербайджан, AZ-1143, Баку, просп. Г. Джавида, 33.

Тел. (99412) 439-59-13. E-mail: solmust@gmail.com

Асадов Мирсалим Миралам оглы, зав. сектором, профессор.

Институт химических проблем НАН Азербайджана.

Азербайджан, AZ-1143, Баку, просп. Г. Джавида, 29.

E-mail: mirasadov@gmail.com

Статья поступила в редакцию 20 сентября 2011 г.

© Мустафаева С. Н., Асадов М. М., Исмаилов А. А., 2012

Результаты эксперимента и их обсуждение

При фиксированных частотах произведены замеры диэлектрической проницаемости образцов TlGaSe_2 (№ 1 и 2) вначале до, а затем после γ -облучения дозами $3 \cdot 10^4$ и $2,25 \cdot 10^6$ рад (рис. 1 и 2). Из рис. 1 видно, что ϵ необлученного образца № 1 в частотной области $5 \cdot 10^4$ — $3,5 \cdot 10^7$ Гц монотонно спадает с 17 до 13,7 по мере увеличения частоты. После γ -облучения образца № 1 дозой $D_\gamma = 3 \cdot 10^4$ рад значения ϵ во всей изученной области частот уменьшались и варьировались от 12,8 до 7,5. Дисперсионная кривая $\epsilon(f)$ образца № 1, облученного дозой $2,25 \cdot 10^6$ рад, занимала промежуточное положение между кривыми 1 и 2 на рис. 1, т. е. после низкой дозы γ -облучения ϵ образца № 1 уменьшалась, а после сравнительно высокой дозы — увеличивалась, оставаясь, однако, всегда меньшей, чем в необлученном образце № 1 во всей изученной области частот. При $f = 5 \cdot 10^4$ и $3,5 \cdot 10^7$ Гц значения ϵ образца № 1 после γ -облучения дозами $3 \cdot 10^4$ и $2,25 \cdot 10^6$ рад практически совпадали.

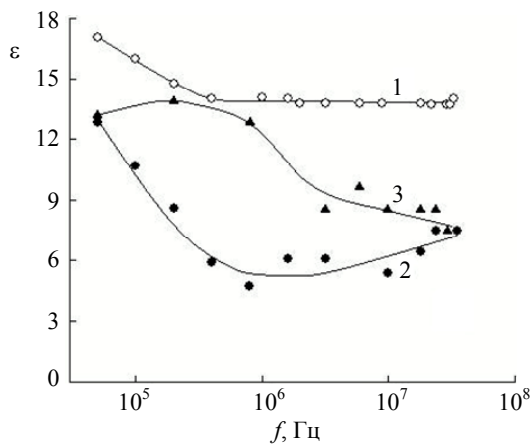


Рис. 1. Частотные зависимости диэлектрической проницаемости образца № 1 при различных дозах γ -облучения D_γ , рад:
1 — 0; 2 — $3 \cdot 10^4$; 3 — $2,25 \cdot 10^6$

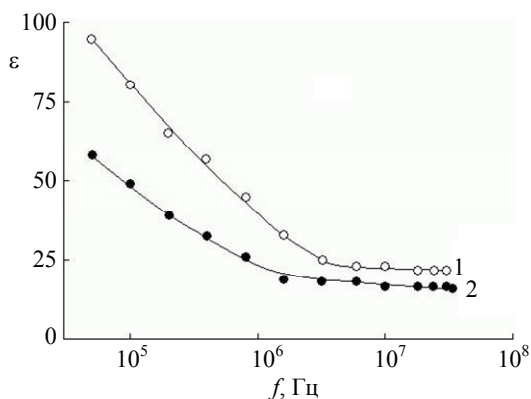


Рис. 2. Частотная дисперсия ϵ образца № 2 до (1) и после (2) γ -облучения дозой $D_\gamma = 2,25 \cdot 10^6$ рад

Диэлектрическая проницаемость образца № 2 также уменьшалась после γ -облучения (см. рис. 2). Однако значения ϵ были намного больше, чем для образца № 1. Если до облучения значения ϵ по мере роста частоты уменьшались от 95 до 22, то после облучения дозой $D_\gamma = 2,25 \cdot 10^6$ рад ϵ образца № 2 уменьшалась от 58 до 16,5. Таким образом, в обоих образцах № 1 и 2 γ -облучение приводило к уменьшению ϵ .

Изучены также частотные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь в монокристаллах TlGaSe_2 при различных дозах γ -облучения (табл. 1). Монотонное уменьшение $\text{tg}\delta$ с частотой в необлученном образце № 1 показывает, что в нем имеют место потери на электропроводность во всей изученной области частот. В облученном дозами $3 \cdot 10^4$ и $2,25 \cdot 10^6$ рад образце № 1 $\text{tg}\delta$ увеличивается по сравнению с $\text{tg}\delta$ до облучения. При этом характер изменения $\text{tg}\delta$ с частотой в облученном образце № 1 свидетельствует о том, что при низких частотах имеют место потери на электропроводность, а при $f \geq 4 \cdot 10^5$ Гц начинают проявлять себя релаксационные потери [3]. В образце № 2, наоборот, после γ -облучения дозой $2,25 \cdot 10^6$ рад имели место только потери на электропроводность, тогда как до облучения уже с $f \geq 10^5$ Гц в этом образце наблюдались релаксационные потери.

Таблица 1

Значения $\text{tg}\delta$ в образцах монокристаллов TlGaSe_2 (№ 1 и 2) в зависимости от частоты переменного тока и дозы γ -облучения

f , Гц	$\text{tg}\delta \cdot 10^4$				
	Образец № 1			Образец № 2	
	D_γ , рад			D_γ , рад	
	0	$3 \cdot 10^4$	$2,25 \cdot 10^6$	0	$2,25 \cdot 10^6$
$5 \cdot 10^4$	833	2042	2931	4032	6925
10^5	700	1667	1852	4012	6128
$2 \cdot 10^5$	543	1566	1641	4637	5518
$4 \cdot 10^5$	412	2086	1305	5099	5218
$8 \cdot 10^5$	289	1689	1547	5871	4968
$1,6 \cdot 10^6$	243	1658	1885	6335	4555
$3,2 \cdot 10^6$	199	1502	1720	5524	3074
$6 \cdot 10^6$	159	811	1574	3664	1955
10^7	141	1011	1818	2428	1494
$1,8 \cdot 10^7$	137	824	1749	1551	873
$2,4 \cdot 10^7$	132	675	1789	1227	708
$3 \cdot 10^7$	129	685	1948	1095	614
$3,5 \cdot 10^7$	121	660	1548	841	584

На рис. 3 показаны частотные зависимости мнимой составляющей комплексной диэлектрической проницаемости ϵ'' для TlGaSe_2 (образец № 1) при различных дозах γ -облучения. Все три кривые характеризовались релаксационной дисперсией. В отличие от ϵ' (см. рис. 1) значения ϵ'' γ -облученного образца № 1 превышали значения ϵ'' необлученного образца. При этом чем выше была доза облучения, тем больше увеличивались значения ϵ'' при всех изученных частотах. В образце № 2 при низких и высоких частотах значения ϵ'' до и после γ -облучения были очень близки, а в области частот $10^5 - 10^7$ Гц значения ϵ'' после облучения дозой $2,25 \cdot 10^6$ рад были значительно ниже, чем до облучения (рис. 4). При этом значения ϵ'' образца № 2 были на порядок выше, чем значения ϵ'' образца № 1.

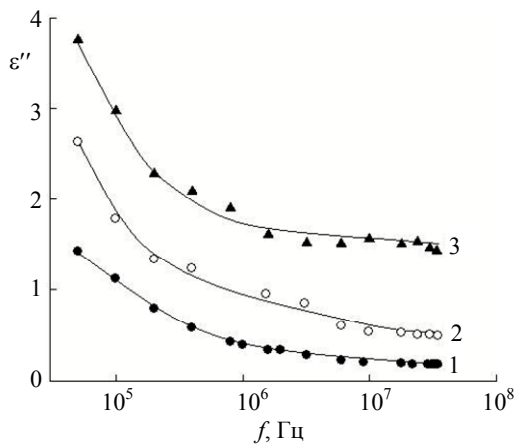


Рис. 3. Дисперсионные кривые $\epsilon''(f)$ образца № 1 при различных дозах γ -облучения D_γ , рад: 1 — 0; 2 — $3 \cdot 10^4$; 3 — $2,25 \cdot 10^6$

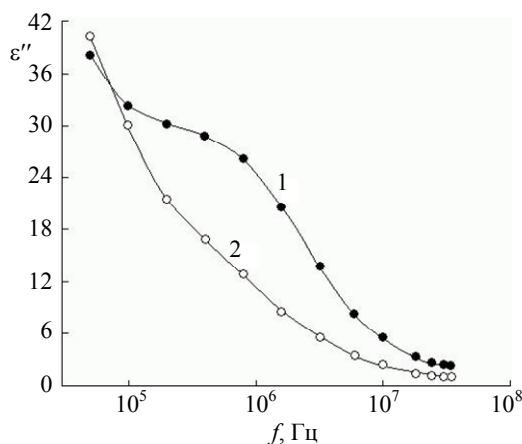


Рис. 4. Кривые $\epsilon''(f)$ для образца № 2 до (1) и после (2) γ -облучения дозой $2,25 \cdot 10^6$ рад

Были изучены также частотные зависимости ас-проводимости образцов № 1 и 2 (рис. 5) до и после γ -облучения. Ас-проводимость существенно

превышала дс-проводимость (т. е. проводимость на постоянном токе) исследуемых образцов. Кривые $\sigma_{ac}(f)$ образца № 1 до и после γ -облучения (1, 1' и 1'', рис. 5) при низких частотах содержали участки со значением $\sigma_{ac} \sim f^{0.5}$. При $f > 10^6$ Гц на кривой 1 (до облучения) и $f > 2 \cdot 10^5$ Гц на кривых 1' и 1'' (после облучения) имели место закономерности $\sigma_{ac} \sim f^{0.8-0.9}$. Увеличение дозы γ -облучения приводило к увеличению ас-проводимости образца № 1.

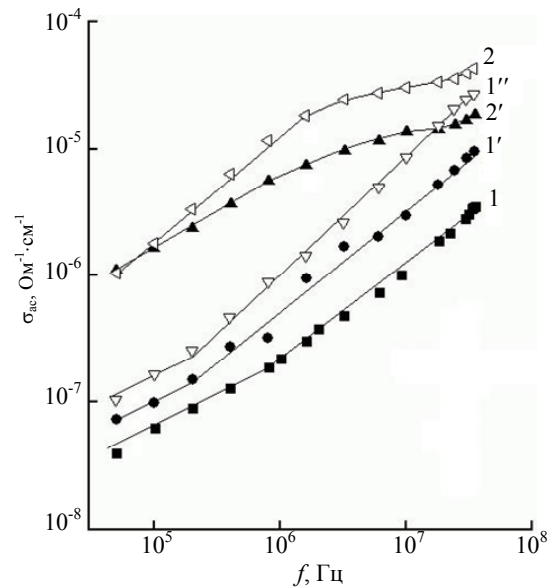


Рис. 5. Частотные зависимости ас-проводимости образцов № 1 и 2 до облучения (кривые 1 и 2) и после γ -облучения дозой D_γ , рад: 1' — $3 \cdot 10^4$; 1'' и 2' — $2,25 \cdot 10^6$

Полученная закономерность $\sigma_{ac} \sim f^{0.8-0.9}$ характерна для прыжковой проводимости по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми [4]:

$$\sigma_{ac}(f) = \frac{\pi^3}{96} e^2 k T N_F^2 a^5 f \left[\ln \left(\frac{v_{ph}}{f} \right) \right]^4, \quad (1)$$

где e — заряд электрона;
 k — постоянная Больцмана;
 N_F — плотность состояний вблизи уровня Ферми;
 a — радиус локализации;
 v_{ph} — фононная частота.

Экспериментальные результаты позволили оценить плотность локализованных состояний вблизи уровня Ферми для образца № 1 до и после γ -облучения. При вычислении N_F для радиуса локализации взято значение $a = 34 \text{ \AA}$ (по аналогии с GaSe [5] — бинарным аналогом TlGaSe_2). Значение v_{ph} для TlGaSe_2 порядка 10^{12} Гц. Полученные для N_F значения помещены в табл. 2, откуда вид-

но, что с увеличением дозы γ -облучения N_F увеличивается.

Таблица 2

Параметры локализованных состояний в образце № 1, полученные из высокочастотных диэлектрических измерений

D_γ , рад	N_F , эВ $^{-1}$ ·см $^{-3}$	τ , с	R , Å	ΔE , эВ	N_t , см $^{-3}$
0	10^{18}	$6 \cdot 10^{-8}$	190	0,07	$7 \cdot 10^{16}$
$3 \cdot 10^4$	$1,6 \cdot 10^{18}$	$5,7 \cdot 10^{-8}$	188	0,045	$7,2 \cdot 10^{16}$
$2,25 \cdot 10^6$	$2,2 \cdot 10^{18}$	$5,7 \cdot 10^{-8}$	188	0,033	$7,2 \cdot 10^{16}$

По теории прыжковой проводимости на переменном токе среднее расстояние прыжка определяется по формуле [6]:

$$R = \left(\frac{1}{2\alpha} \right) \ln \left(\frac{v_{ph}}{f} \right), \quad (2)$$

где α — постоянная спада волновой функции локализованного носителя заряда ($\alpha = 1/a$), $1/f = \tau$ — среднее время прыжков. Значения τ , определенные из полученных экспериментальных результатов, приведены во втором столбце табл. 2.

По формуле (2) определены средние расстояния прыжков в образце № 1 до и после γ -облучения, которые также представлены в табл. 2. Зная R и N_F по формуле из работы [6]:

$$\Delta E = \frac{3}{2\pi R^3 \cdot N_F}, \quad (3)$$

можно оценить энергетический разброс локализованных вблизи уровня Ферми состояний. Полученные для ΔE значения (см. табл. 2) до и после γ -облучения образца № 1 показывают, что с ростом D_γ полоса энергий ΔE сужается. Вычисленная по формуле $N_t = N_F \cdot \Delta E$ концентрация ловушечных состояний в образце № 1 составляла $\sim 7 \cdot 10^{16}$ см $^{-3}$ как до, так и после γ -облучения (см. табл. 2). Отсюда следует, что γ -облучение образца № 1 вплоть до дозы $2,25 \cdot 10^6$ рад не создает дополнительных локализованных состояний в TlGaSe $_2$, а лишь приводит к их энергетическому уплотнению.

Приведенные на рис. 5 кривые 2 и 2' зависимости $\sigma_{ac}(f)$ образца № 2 носили несколько иной характер по сравнению с кривыми 1–1". Для необлученного образца № 2 зависимость $\sigma_{ac}(f)$ состояла из участка $f^{0,8}$, сменяющегося при $f \geq 1,6 \cdot 10^6$ Гц более пологой частотной зависимостью. После γ -облучения дозой $2,25 \cdot 10^6$ рад частотная зависимость $\sigma_{ac}(f)$ (кривая 2') вплоть до $8 \cdot 10^5$ Гц характеризовалась участком $f^{0,7}$, а при

более высоких частотах так же, как и кривая 2, становилась более полой. Следует отметить, что в отличие от образца № 1 в образце № 2 γ -облучение вызывало не рост, а уменьшение ас-проводимости. При этом значения σ_{ac} до и после γ -облучения более всего отличались при высоких частотах, а при $f = 5 \cdot 10^4$ и 10^5 Гц значения σ_{ac} практически совпадали друг с другом. Определенные для образца № 2 значения N_F , τ , R , ΔE и N_t приведены в табл. 3, из которой видно, что после γ -облучения дозой $2,25 \cdot 10^6$ рад значение N_F уменьшается, τ увеличивается в 2 раза, среднее расстояние прыжка также увеличивается.

Таблица 3

Параметры локализованных состояний в образце № 2

D_γ , рад	N_F , эВ $^{-1}$ ·см $^{-3}$	τ , с	R , Å	ΔE , эВ	N_t , см $^{-3}$
0	$7,5 \cdot 10^{18}$	$1,2 \cdot 10^{-6}$	240	$5 \cdot 10^{-3}$	$3,8 \cdot 10^{16}$
$2,25 \cdot 10^6$	$5,5 \cdot 10^{18}$	$2,4 \cdot 10^{-6}$	252	$5,4 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{16}$

Как было показано выше, в образце № 1 за счет γ -облучения дозами $3 \cdot 10^4$ и $2,25 \cdot 10^6$ рад диэлектрическая проницаемость уменьшается, а tg δ увеличивается (см. табл. 1). Такой же эффект в монокристалле TlGaSe $_2$ был получен за счет частичного замещения галлия железом [2]. Отметим, что монокристаллы TlGaSe $_2$, из которых был изготовлен образец № 1, были сколоты от одного и того же слитка, что и монокристаллы TlGaSe $_2$, изученные в работе [2].

Заключение

Проведенные на переменном токе диэлектрические измерения γ -облученных образцов TlGaSe $_2$, изготовленных из разных технологических партий, позволили установить природу диэлектрических потерь, механизм переноса заряда, оценить важнейшие параметры кристаллов, такие как плотность и энергетический разброс локализованных вблизи уровня Ферми состояний, среднее время и расстояние прыжков. Показано, что за счет γ -облучения можно существенно изменять значения диэлектрических коэффициентов (ϵ , ϵ'' , tg δ), а также ас-проводимость монокристаллов TlGaSe $_2$.

Литература

1. Плюц О. Б., Шелег А. В. // Кристаллография. 1999. Т. 44. № 5. С. 873.
2. Мустафаева С. Н. // Журнал радиоэлектроники. 2008. № 5. С. 1.
3. Пасынков В. В., Сорокин В. С. Материалы электронной техники. — М.: Высш. шк., 1986.
4. Pollak M. // Phil. Mag. 1971. V. 23. P. 519.

5. Мустафаева С. Н. // Неорганические материалы. 1994. Т. 30. № 5. С. 619.

6. Мотт Н., Дэвис Э. Электронные процессы в некристаллических веществах. — М.: Мир, 1974.

Radiation effects in the TlGaSe₂ single crystals

S. N. Mustafaeva, A. A. Ismailov

Institute of Physics, National Academy of Sciences of Azerbaijan,
33 G. Javid ave., Baku, AZ 1143, Azerbaijan
E-mail: solmust@gmail.com

M. M. Asadov

Institute of Chemical Problems, National Academy of Sciences of Azerbaijan,
29 G. Javid ave., Baku, AZ 1143, Azerbaijan
E-mail: mirasadov@gmail.com

The influence of gamma irradiation on the dielectric properties and ac-conductivity across layers of the TlGaSe₂ single crystals has been investigated in the frequency range from $5 \cdot 10^4$ up to $3.5 \cdot 10^7$ Hz. It has been shown that gamma irradiation of TlGaSe₂ single crystals with a dose of $3 \cdot 10^4$ and $2.25 \cdot 10^6$ rad leads to decrease in the dielectric permittivity and changes the nature of the dielectric loss. The hopping conduction through localized states near the Fermi level has been established. The Fermi level densities of states, the spread of their energies, and the mean hop time and distance have been estimated.

PACS 71.20.Nr, 72.20.Ee, 72.20.Fr, 72.20.Jv, 72.30.+q

Keywords: single crystal, TlGaSe₂, gamma irradiation, ac-conductivity, dielectric permittivity, frequency dispersion, hop distance, localized states, dielectric loss.

Bibliography — 6 references.

Received September 20, 2011