

TlInSe₂ KRİSTALINDA HƏCMİ YÜKLƏRİN YARATDIĞI POLYARLAŞMA VƏ İON KEÇİRİCİLİYİ

R.M. SƏRDARLI¹, O.Ə. SƏMƏDOV¹, N.Ə. ƏLİYEVƏ², A.P. ABDULLAYEV¹, E.K. HÜSEYNOV², İ.S. HƏSƏNOV², F.T. SALMANOV¹

¹AMEA Radiasiya Problemləri İnstitutu, AZ-1143, Bakı, B.Bahabzadə 9

e-mail: sardarli@yahoo.com

²AMEA Fizika İnstitutu, AZ-1143, Bakı, H. Cavid prospekti 33

TlInSe₂ kristalının elektrik xassələri 100÷450K temperatur intervalında sabit və dəyişən elektrik sahələrində tədqiq olunmuşdur. Sabit elektrik sahəsində elektrik keçiriciliyinin (σ) zamandan asılı olaraq azalması müşahidə olunmuşdur. Kompleks impedans spektrli ($Z^*(f)$) 25-10⁶ Hz tezlik intervalında ölçülmüşdür. Ekvivalent sxem əvəzləmələri üsulundan istifadə etməklə ($Z''-Z'$) kompleks müstəvi diaqramları analiz olunmuşdur. Göstərilmişdir ki, tədqiq olunan temperatur və tezlik intervalında TlInSe₂ birləşməsinin elektrik xassələri Pt təcridedici elektrodu yaxınlığında yığılmış yükdaşıyıcıların və Tl ionlarının sıçrayışı ilə təyin olunur.

Açar sözlər: Təcridedici elektrod, kompleks impedans spektri, ekvivalent sxem, qodoqramma.

PACS: 71.20.Nr

GİRİŞ

[1-4] işlərində TlGaTe₂, TlInSe₂, TlInTe₂ birləşmələrinin elektrik və dielektrik xassələri öyrənilmiş və 300K-dən yuxarı temperaturalarda, onlarda superior keçiriciliyi müşahidə olunmuşdur. Müşahidə edilən keçiriciliyin Tl⁺ ionlarının tallium altqəfəsində (Ga³⁺Te²⁻, In³⁺Se²⁻, In³⁺Te²⁻) nanozəncirləri arasında diffuziyası ilə əlaqələndirilmişdir.

Hazırkı işdə TlInSe₂ kristalında ion keçiriciliyi prosesləri və həcmi yük polarizasiya effektləri öyrənilib. Sabit elektrik sahəsində elektrik keçiriciliyinin dəyişmə kinetikasi ($\sigma(t)$) və 25-10⁶ Hz tezliklər intervalında $Z^*(f)$ kompleks impedans spektrinin tədqiqi verilmişdir.

EKSPERİMENTİN METODİKASI

TlInSe₂ birləşməsi vakuumba kvarts ampulada ilkin komponentləri (təmizlik dərəcəsi 99,99%) əritməklə sintez olunmuş, onun monokristal isə Bricman metodu ilə yetişdirilmişdir.

TlInSe₂ kristalının elektrik keçiriciliyinin temperatur asılılığını tədqiq etmək üçün materialdan müstəvi kondensator hazırlanmışdır. Kondensatorun səthinə platin və gümüş elektrod çəkilmişdir.

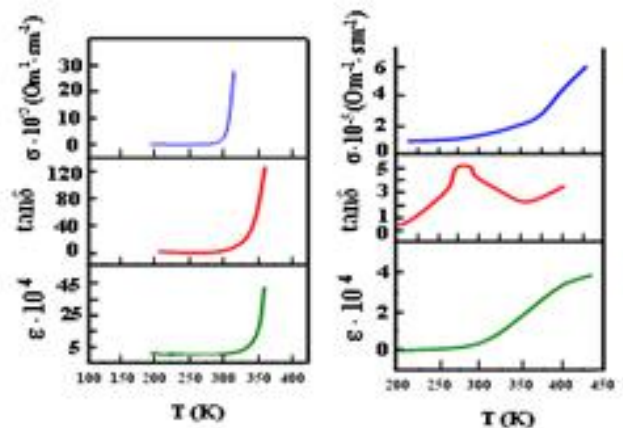
TlInSe₂ kristalının elektrik keçiriciliyi rəqəmli E7-25 immitans cihazı vasitəsi ilə tədqiq olunmuşdur.

EKSPERİMENTAL NƏTİCƏLƏR VƏ ONLARIN MÜZAKİRƏSİ

[2] işdə elektrik keçiriciliyinin, dielektrik nüfuzluğunun və dielektrik itki bucağının tangensinin temperatur asılılıqlarının tədqiqatlarından TlInSe₂ kristalında gözə çarpan ion daşınmasının başlanğıcının temperatur oblastı müəyyən edilmişdir. Aparılmış tədqiqatlar belə bir nəticəyə gəlməyə imkan verdi ki, TlInSe₂ kristallarında elektrik keçiriciliyi birvalentli tallium atomlarının həm zəncirləri boyunca (In³⁺Se²⁻), həm də onlara perpendikulyar istiqamətdə sıçrayışları vasitəsilə həyata keçirilir.

[2] ədəbiyyat məlumatına əsasən, TlInSe₂ kristalında ion keçiriciliyi müşahidə olunduğundan, elektrik keçiriciliyini dəyişən sahədə tədqiq edərək elektrod-nümunə sərhəddində meydana çıxan kontakt hadisələrinin, eləcə də ölçü özəyinin və birləşdirici məfillərin tutum xüsusiyyətləri ilə bağlı effektlərin təsirini nəzərə almaq lazımdır. Bu effektlərin təsirini aydınlaşdırmaq və sistemin müqavimətinə əsas töhfəni nümunənin verdiyi tezlik oblastını müəyyənləşdirmək üçün ölçmələr gümüş və platin elektrodlu özləklərdə geniş tezlik (25-10⁶ Hz) və temperatur (100-450K) diapazonunda aparılmışdır.

Tədqiq olunan TlInSe₂ kristalında keçiriciliyin, dielektrik nüfuzluğunun və dielektrik itki bucağı tangensinin temperatur asılılıqlarının təhlili materiallarda gözə çarpan ion daşınmasının başlanğıcının temperatur oblastlarını müəyyənləşdirməyə imkan vermişdir. Şəkil 1 (a və b)-dən görüldüyü kimi, gümüş elektrodlu özləkdə ölçü aparıldıqda platin elektrodlu özləkdəki nəzərə alınmayan dielektrik nüfuzluğunun 10 dəfə, dielektrik itki bucağı tangensinin qiymətinin 20 dəfə daha sürətli artımı və keçiriciliyin isə 10 dəfə azalması müşahidə olunur.



Şəkil 1. TlInSe₂ kristalının keçiriciliyinin, dielektrik nüfuzluğunun və dielektrik itki bucağının tangensinin temperaturdan asılılığı. Platin (a) və gümüş (b) kontaktlarından istifadə olunmuşdur. Ölçmələr 500 Hz tezlikdə aparılmışdır.

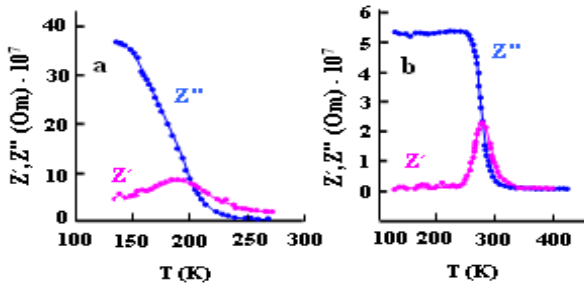
Şəkil 1(a)-dan görüldüyü kimi, dielektrik nüfuzluğunun kəskin artması müşahidə olunur. ϵ kəskin böyüməsi onunla bağlıdır ki, temperaturun yüksəlməsi ion yük daşıyıcılarının konsentrasiyasının artması ilə müşayiət olunur və bloklayıcı xarakterli elektrodlar üçün xarici potensiallar fərqi tətbiq olunduqda nümunənin elektrodlara yaxın hissələrində (oblastlarında) həcmi elektrik yüklərinin yaranması başlayır [6]. Bu da nümunənin ölçülən tutumunun və, beləliklə də, dielektrik nüfuzluğunun kəskin artmasına gətirib çıxarır.

Temperaturun 200 K-dən 275 K-ə qədər artması ilə impedansın həqiqi (Z') və xəyali (Z'') hissələrinin, xüsusi elektrik keçiriciliyinin, dielektrik itki bucağı tangensinin və dielektrik nüfuzluğunun qiymətləri cüzi dəyişir (şəkil 1, a və b).

200–275 K temperatur oblastında yükdaşıyıcıların aktivləşmə enerjisi 0,19 eV təşkil edir ki, bu da daşıyıcıların aktivləşməsinin termik təbiətə malik olmasını sübut edir. Daşıyıcıların aktivləşmə enerjisinin aşağı qiymətlərindən ($T < 200$ K-də) daha yüksək ($T > 200$ K-də) qiymətlərinə keçid, bizim fikrimizcə, nümunənin tam keçiriciliyinə ion daşınmasının töhfəsinin kəskin artması ilə bağlıdır. Elə həmin temperatur oblastında dielektrik nüfuzluğunun da kəskin artması müşahidə olunur.

250 K temperaturdan başlayaraq impedansın xəyali (Z'') hissəsinin sürətli azalması və həqiqi (Z') hissəsinin isə artması müşahidə olunur (şəkil 2, a və b). İmpedansın həqiqi hissəsində ion keçiriciliyinin başlanğıcına uyğun olan temperaturlar oblastında maksimumlar müşahidə olunur. Bu xüsusiyyətlər, həmçinin, dielektrik nüfuzluğunun və itki bucağı tangensinin gedişində də mövcuddur.

Keçiriciliyin elektron toplananı Vaqnerin polyarlaşma metodunun köməyi ilə təyin edilmişdir. Vaqner metodu aşağıdakı hadisəyə əsaslanır: İon və ya elektron-ion səciyyəli yük daşınmasına malik bərk elektrolitlərdə sabit cərəyanda elektrik keçiriciliyinin ölçülməsi zamanı vaxt ötdükcə keçiriciliyin dəyişməsi müşahidə olunur.



Şəkil 2. Kompleks impedans spektrinin xəyali və həqiqi hissəsinin temperaturdan asılılığı: a- platin kontakt, b- gümüş kontakt.

Ölçülərin hər bir tsiklinin keçirilməsindən əvvəl nümunə, xarici sahə tətbiq edilmədən, 350 K temperaturda bir neçə saat ərzində saxlanmışdır. Sonra nümunəyə 1V/sm intensivlikli sabit elektrik sahəsi tətbiq olunmuş və müəyyən zaman fasilələrindən sonra cərəyan ölçülmüşdür.

Bu hadisə nümunənin yerləşdiyi özəkdə polyarlaşma prosesinin meydana çıxması, yəni nümunə-elektrod sərhəddində ikiqat elektrik təbəqəsinin yaranması ilə bağlıdır. Təcridedicilərdə elektrodlar nümunə-elektrod sərhəddin-

də yükün daşınmasında iştirak edən ionları saxladığından (lənqitdiyindən), mütəhərrik ionlar sabit elektrik sahəsinin təsiri altında mənfi yüklənmiş elektrodun yaxınlığında yığılır və nümunənin həcmində konsentrasiya qradienti yaranırlar. Müsbət yüklənmiş ionların konsentrasiya qradientinin mövcudluğu ionların, yəni ionların dreyf axınının əksinə yönəlmiş diffuziya selinin yaranmasına gətirir.

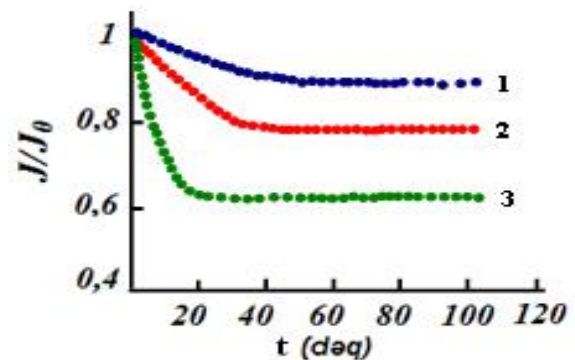
Stasionar (qərarlaşmış) halda dreyf və diffuziya seləri bir-birini kompensasiya edir və nümunədən yalnız elektron cərəyanı axır. Bu zaman nümunənin müqaviməti $\rho_{\Sigma} = \rho_i + \rho_e$ qiymətindən (ilk zaman anında) stasionar (qərarlaşmış) polyarlaşmış haldakı ρ_e qiymətinə qədər dəyişir. Beləliklə, xüsusi müqavimətin zamandan asılılığından keçiriciliyin elektron və ion toplananlarının nisbətini müəyyən etmək olar [5].

İon keçiriciliyinə malik bloklayıcı elektrodlu özəyə sabit potensiallar fərqi tətbiq etməklə elektrik keçiriciliyinin zamandan asılılığının tədqiqi, keçiriciliyin elektron və ion toplananlarını qiymətləndirməyə imkan vermişdir.

TlInSe₂ kristalının müxtəlif temperaturalarda elektrik keçiriciliyinin zamandan asılılığı şəkil 3-də verilmişdir. Şəkil 3-dən görüldüyü kimi, sabit sahədə elektrik keçiriciliyinin zaman keçdikcə qeyri-xətti azalması müşahidə edilir, müəyyən zamandan sonra isə dəyişməz qalır. Elektrik keçiriciliyinin zamandan asılı olaraq qeyri-xətti dəyişməsi nisbətən yuxarı temperaturalarda sürətlə baş verir. Sabit elektrik sahədə cərəyanın zaman keçdikcə azalması bloklayıcı elektrodların yaxınlığında həcmi yük oblastlarının qarşılıqlı kompensasiyası ilə izah olunur.

Elektrik xassələrinin tədqiqi zamanı alınan eksperimental nəticələrə elektrod/nümunə sərhəddində baş verən və tədqiq edilən nümunənin elektrik keçiriciliyinin qiymətini təhrif edən proseslər (elektrodlarda yükdaşıyıcıların bloklanması, həcmi yüklərin yaranması və relaksasiyası və s.) əhəmiyyətli dərəcədə təsir göstərir. Tam keçiricilikdən keçiriciliyə elektrod proseslərinin töhfəsini ayırmaq üçün dəyişən cərəyanda ölçmələrdən istifadə edilir.

Qarşıya qoyulan məsələni daha tam həll etməyə impedans spektroskopiyası metodu imkan verir. Bu metodun əsasında impedans qodoqraflarının qurulması və təhlili durur.

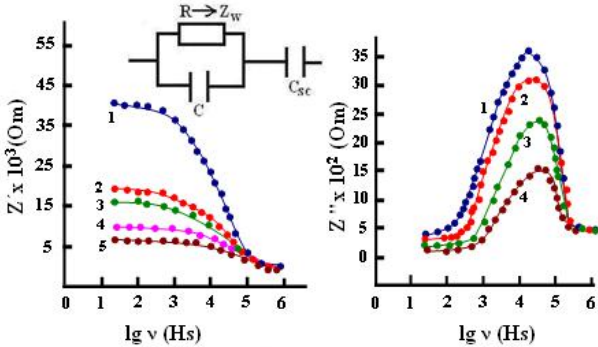


Şəkil 3. TlInSe₂ kristalının müxtəlif temperaturalarda elektrik cərəyanının zamandan asılılığı. 1- 330K, 2- 347 K, 3- 397 K.

İmpedansın tezlik asılılıqlarının təhlilinin nəticələrindən istifadə edərək, dəyişən cərəyanın, təcrübədə təyin edilən parametrlərə elektrod impedansının töhfəsinin kiçik olduğu tezliklər oblastını müəyyən etmək olar. Bu oblastdan tezliyi seçib, elektrik keçiriciliyinin və dielektrik

nüfuzluğunun və s. temperatur asılılığını ölçmək olar ki, və bu zaman alınmış nəticə materialın özünün həqiqi xassələrini xarakterizə edər. Həm də qeyd etmək lazımdır ki, göstərilən diapazonun sərhədləri xarici amillərin təsiri altında dəyişə bilər (məsələn, temperaturun artması sərhəd tezliyinin yüksək tezliklər oblastına tərəf sürüşməsinə gətirir). Sabit elektrik sahəsində keçiriciliyin vaxt keçdikcə azalması (şəkil 3) sübut edir ki, TlInSe₂ kristalının elektrik xassələri həm sistemin həcmi xüsusiyyətlərindən, həm də elektrodyanı hadisələrdən asılıdır. Bu, dreyf və diffuziya cərəyanlarının qarşılıqlı kompensasiyası, eləcə də bloklayıcı elektrodların yaxınlığında həcmi yük oblastlarının yaranması ilə izah olunur.

Müxtəlif proseslərin töhfələrini nümunənin tutumunu və elektrik keçiriciliyini temperatur və tezliklərin kifayət qədər geniş intervalında ölçmək yolu ilə ayırmaq olar. Şəkil 3 (a)-nın məlumatlarına əsasən görünür ki, həcmi-yük polyarlaşması prosesləri infra-alçaq tezliklər oblastında $1/(2\pi\tau_{sc}) \sim 10^4 - 10^5$ Hz oblastında baş verir. Keçiriciliyin tezlik xarakteristikalarını öyrənmək məqsədi ilə $25 \cdot 10^6$ Hz tezlik diapazonunda TlInSe₂ kristallarının kompleks impedans spektrləri $Z_{\square} = l/\sigma_{\square}$ ölçülmüşdür. Şəkil 4-də xüsusi impedansın həqiqi hissəsinin $Z'(f)$ pilləli dəyişməsi və xəyali hissəsinin $Z''(f)$ maksimumu şəklində anomaliyalardan görünür ki, ($Z' - Z''$) kompleks müstəvisindəki diaqramlar iki əsas prosesin mövcud olduğunu sübut edir. Onlardan birinə yarımçevrələr, digərinə isə aşağı tezlik oblastında şüalar uyğun gəlir (şəkil 5).

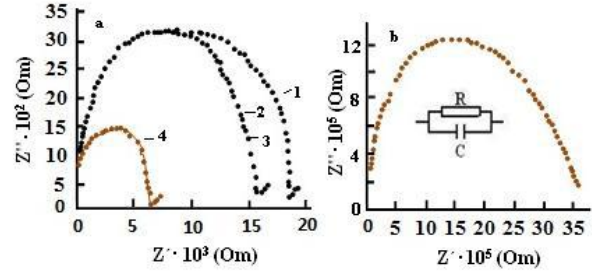


Şəkil 4. TlInSe₂ kristalının kompleks impedansının $Z^*(f)$ həqiqi (a) və xəyali (b) hissəsinin tezlikdən asılılığı. Şəkilə əlavədə ekvivalent dəyişmə sxemi verilmişdir. Platin kontaktdan istifadə edilmişdir. (a-1-302K; 2-330K; 3-348K; 4-370K; 5-398K; b-1-330K; 2-348K; 3-370K; 4-398K.

Dəyişən sahədə elektrik xassələrinin ölçmələrindən yükdaşıyıcılar, keçiricilik mexanizmləri, elektrodyanı təbəqələrdə tutum effektləri haqqında informasiyanın əldə edilməsi üçün geniş istifadə olunur. Real sistemlərin dielektrik və impedans spektrlərini ekvivalent əvəzləmə sxemlərinin (dəyişən cərəyan sxemlərinin) köməyi ilə təsvir etmək olar. ($Z' - Z''$) kompleks müstəvisində ardıcıl RC-dövrəsinə şaquli şüa şəklində diaqram uyğundur, paralel RC-dövrəsi isə yarımçevrə şəklində qodoqraf verir.

Əldə edilmiş məlumatlar TlInSe₂ kristallarının $Z^*(f)$ spektrlərini təsvir etməyə imkan verən ekvivalent sxem təklif etməyə imkan verir. Əgər yükün daşınması və həcmi-yük polyarlaşması daşıyıcıların bir tipi ilə təmin olursa, elektrodyanı oblastlarda həcmi yükün yığılmasını paralel RC-halqası ilə ardıcıl birləşdirilmiş C_{sc} tutumu ilə

təsvir etmək olar. Bloklayıcı elektrodlu bərk elektrolitlərin impedans spektrlərinin modelləşdirilməsi üçün istifadə edilən belə ekvivalent sxem (şəkil 4-ə əlavə) ($Z' - Z''$) müstəvisində yarımçevrə və şaquli şüa şəklində diaqram verir. ($Z' - Z''$) müstəvisində ion keçiriciliyinə yarımçevrələr uyğundur (şəkil 5, a).



Şəkil 5. TlInSe₂ kristalının impedans spektri. a- (platin kontakt) 1-300K, 2-330K, 3-348K və 4-398 K; b- (gümüş kontakt) $T=300$ K.

Qodoqrafların aşağı tezlikli hissəsində (şəkil 5, a) şüalar həcmi-yük polyarlaşması ilə izah edilə bilər. O, bloklayıcı elektrodlar olduğu halda vaxt keçdikcə keçiriciliyin azalmasına gətirir (şəkil 3). Alınmış məlumatlar göstərir ki, $10^2 - 10^6$ Hz tezliklər diapazonu üçün TlInSe₂ kristalında elektrodyanı oblastlarda yükdaşıyıcıların yığılması baş vermir (platin kontaktlar).

Şəkil 5, b-də (gümüş kontaktlar) TlInSe₂ kristalları üçün impedans qodoqrafı ($Z''(Z')$ asılılığı) göstərilmişdir. Şəkil 5-dən görüldüyü kimi impedans qodoqrafı yarımçevrə şəklindədir və impedans spektri bir budaqla təqdim edilmişdir. Yüksək tezliklər oblastında Z'' və Z' sifirə yaxınlaşır. Bu halda ekvivalent sxem paralel birləşdirilmiş C tutumu və R müqavimətindən ibarət konturla təsvir edilə bilər (şəkil 5 (b)-ə əlavə). Təcrübi nəticələrin izahı zamanı ekvivalent sxemin parametrlərini yalnız o halda hesablamaq olar ki, $Z''(\omega)$ asılılığında $\omega_{max}RC = 1$ olduqda, müşahidə olunan maksimum ölçmə üçün əl çatan 20 $Hz < \omega_{max} < 1$ MHz tezliklər oblastında olsun.

Beləliklə, sabit elektrik sahəsində platin elektrodlardan istifadə etməklə TlInSe₂ kristallarının elektrik keçiriciliyinin vaxt keçdikcə, dreyf və diffuziya cərəyanlarının qarşılıqlı kompensasiyası ilə şərtlənən əhəmiyyətli dərəcədə azalması aşkar edilmişdir.

Kompleks impedans spektrlərinin öyrənilməsi əsasında göstərilmişdir ki, tədqiq edilən temperatur-tezlik intervalında TlInSe₂ kristallarının elektrik xassələri iki əsas prosesin mövcudluğu ilə müəyyən edilir. Proseslərdən biri düyünlərərası ionların sıçrayışlı (hoppayma) keçiriciliyinə uyğundur, digəri isə bloklayıcı elektrodların yaxınlığında yükdaşıyıcıların yığılması ilə bağlıdır. Alınmış məlumatlar göstərir ki, TlInSe₂ kristalında 10^2 Hz-dən aşağı tezliklərdə elektrodyanı oblastlarda yükdaşıyıcıların yığılması özünü göstərir, $10^2 - 10^6$ Hz tezliklər diapazonunda isə özünü göstərmir (platin kontaktlar).

Həmçinin qeyd etmək ki, alınmış məlumatlar göstərir ki, gümüş kontaktlardan istifadə etdikdə (şəkil 5, b) elektrodyanı oblastlarda yükdaşıyıcıların yığılması effektləri özünü göstərmir.

- [1] *P.M. Sardarly, O.A. Samedov, A.P. Abdullaev, Ə.K. Guseynov, F.T. Salmonov, G.P. Saфарова. ФТП, 44, 610, 2010.*
- [2] *P.M. Sardarly, O.A. Samedov, A.P. Abdullaev, F.T. Salmonov, O.З. Алекперов, Э.К. Гусейнов, Н.А. Алиева. ФТП, 45, 1441, 2011.*
- [3] *P.M. Sardarly, O.A. Samedov, A.P. Abdullaev, Э.К. Гусейнов, Э.М. Годжаев, Ф.Т. Салмонов. ФТП, 45, 1009, 2011.*
- [4] *R.M. Sardarly, O.A. Samedov, A.P. Abdullaev, F.T. Salmanov, A. Urbanovic, F. Garet. J-I. Jpn. J. Appl. Phys., 50. 05FC09, 1-2, 2011.*
- [5] *О.Л. Хейфец, Л.Я. Кобелев, Н.В. Мельникова, Л.Л. Нугаева. ЖТФ, 77, 90, 2007.*
- [6] *О.Л. Хейфец, Н.В. Мельникова, А.Л. Филиппов, Э.Ф. Шакиров, А.Н. Бабушкин, Л.Л. Нугаева. ФТТ, 54, 1466, 2012.*

R.M. Sardarli, O.A.Samedov, N.A. Alieva, A.P. Abdullayev, E.K. Huseynov, I.S. Hasanov, F.T. Salmanov

THE POLARIZATION CAUSED BY VOLUME CHARGES AND IONIC CONDUCTIVITY IN TlInSe₂ CRYSTALS

In temperature range 100÷450 K, in constant and alternating electric field the TlInSe₂ crystals are investigated. In constant electric field reduction of conductivity in time is revealed. Spectra of complex impedance in a frequency range 25-10⁶ Hz are measured. The analysis of diagrams in a complex plane ($Z''-Z'$) is carried out with use of equivalent circuits method. It is shown, that in the investigated interval of temperatures and frequencies electric properties of TlInSe₂ crystals are defined by hopping conductivity and accumulation of charge carriers near to blocking platinum electrodes.

Р.М. Сардарлы, О.А. Самедов, Н.А. Алиева, А.П. Абдуллаев, Э.К. Гусейнов, И.С. Гасанов, Ф.Т. Салманов

ПОЛЯРИЗАЦИЯ, ВЫЗВАННАЯ ОБЪЕМНЫМИ ЗАРЯДАМИ И ИОННАЯ ПРОВОДИМОСТЬ В КРИСТАЛЛАХ TlInSe₂

Исследованы кристаллы TlInSe₂ в постоянном и переменном электрическом поле в температурной области 100÷450К. Обнаружено уменьшение электропроводности σ со временем в постоянном поле. В диапазоне частот 25–10⁶ Гц измерены спектры комплексного импеданса $Z^*(f)$. Анализ диаграмм в комплексной плоскости ($Z''-Z'$) проведен с использованием метода эквивалентных схем замещения. Показано, что в исследованном интервале температур и частот электрические свойства кристаллов TlInSe₂ определяются прыжковой проводимостью и накоплением носителей заряда вблизи блокирующих платиновых электродов.

Qəbul olunma tarixi: 18.03.2015