

Влияние γ -облучения на диэлектрические свойства и проводимость монокристалла TlInS_2

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

Институт физики Национальной академии наук Азербайджана,
Баку, Азербайджан

* Институт химических проблем Национальной академии наук Азербайджана,
Баку, Азербайджан

E-mail: mirasadov@gmail.com

(Поступила в Редакцию 12 февраля 2009 г.
В окончательной редакции 30 марта 2009 г.)

Изучено влияние γ -облучения на диэлектрические свойства и ac -проводимость слоистого монокристалла TlInS_2 в диапазоне частот $5 \cdot 10^4$ – $3.5 \cdot 10^7$ Hz. Показано, что γ -облучение монокристалла TlInS_2 дозой 10^4 – $2.25 \cdot 10^6$ rad приводит к существенному увеличению тангенса угла диэлектрических потерь $\text{tg } \delta$, действительной ϵ' и мнимой ϵ'' составляющих комплексной диэлектрической проницаемости и ac -проводимости σ_{ac} поперек слоев. Установлено, что в TlInS_2 при всех дозах γ -облучения имеют место потери на электропроводность вплоть до 10^7 Hz, после чего начинают проявляться релаксационные потери. Облучение монокристалла TlInS_2 приводило к увеличению дисперсии $\text{tg } \delta$, ϵ' и ϵ'' . Показано, что по мере накопления дозы γ -облучения в монокристалле TlInS_2 плотность локализованных состояний вблизи уровня Ферми N_F увеличивается (от $5.2 \cdot 10^{18}$ до $1.9 \cdot 10^{19}$ $\text{eV}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$).

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

Монокристаллы TlInS_2 являются слоистыми широкозонными полупроводниками, склонными к политипизму [1,2]. Физические свойства монокристаллов TlInS_2 очень чувствительны к внешним воздействиям: постоянному (dc) и переменному (ac) электрическим полям, электромагнитным излучениям видимого и рентгеновского диапазонов [3–6]. Управлять физическими свойствами этих кристаллов возможно также путем интеркалирования их металлическими ионами [5].

Целью настоящей работы является изучение влияния гамма-радиации на электрические и диэлектрические свойства монокристаллов TlInS_2 , измеренные на переменном токе.

1. Экспериментальная часть

Диэлектрические коэффициенты монокристаллов TlInS_2 измерены резонансным методом с помощью Q -метра TESLA BM560. Диапазон частот переменного электрического поля составлял $f = 5 \cdot 10^4$ – $3.5 \cdot 10^7$ Hz.

Образцы из TlInS_2 были изготовлены в виде плоских конденсаторов, плоскость которых была перпендикулярна кристаллографической C -оси кристалла. В качестве электродов использована серебряная паста. Толщина образцов из TlInS_2 составляла 200–280 μm , а темновая удельная электропроводность при комнатной температуре $2 \cdot 10^{-11}$ $\Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$. Площадь обкладок для всех изученных конденсаторов варьировалась от $4 \cdot 10^{-2}$ до 0.24 cm^2 . Все измерения проведены при 300 K. Точность определения резонансных значений емкости и добротности $Q = 1/\text{tg } \delta$ измерительного контура ограничена ошибками, связанными со степенью разрешения отсчетов по приборам. Градуировка конденсатора имела

точность ± 0.1 pF. Воспроизводимость положения резонанса составляла по емкости ± 0.2 pF, по добротности ± 1.0 – 1.5 деления шкалы. При этом наибольшие отклонения от средних значений составляли 3–4% для ϵ' и 7% для $\text{tg } \delta$.

Облучение образцов проводилось на радиационной химической установке непрерывного действия (РХУНД-20000) от источника Co^{60} . Энергия γ -квантов составляла 1.25 MeV. Дозы облучения накапливались путем последовательных выдержек в одном и том же образце и составляли 10^4 , $4 \cdot 10^4$ и $2.25 \cdot 10^6$ rad. Диэлектрические измерения образцов проводились после каждого облучения.

2. Результаты и обсуждение

При фиксированных частотах произведены измерения диэлектрической проницаемости образца TlInS_2 сначала до γ -облучения, а затем после γ -облучения дозами $D_\gamma = 10^4$, $4 \cdot 10^4$ и $2.25 \cdot 10^6$ rad. Зависимости диэлектрической проницаемости от дозы γ -облучения при разных частотах показаны на рис. 1 (кривые 1–3). При всех частотах от $5 \cdot 10^4$ до $3.5 \cdot 10^7$ Hz на зависимости $\epsilon'(D_\gamma)$ сначала наблюдается рост ϵ' , а затем (при $D_\gamma > 10^4$ rad) по мере накопления дозы значение ϵ' спадало, но при этом всегда превышало значение ϵ' необлученного образца TlInS_2 . Наибольшую диэлектрическую проницаемость образец TlInS_2 имел после облучения дозой $D_\gamma = 10^4$ rad, так что при $f = 5 \cdot 10^4$ Hz значение ϵ' облученного образца в 2.7 раза превышало ϵ' необлученного образца. При более высоких частотах это отношение составляло ~ 2.3 .

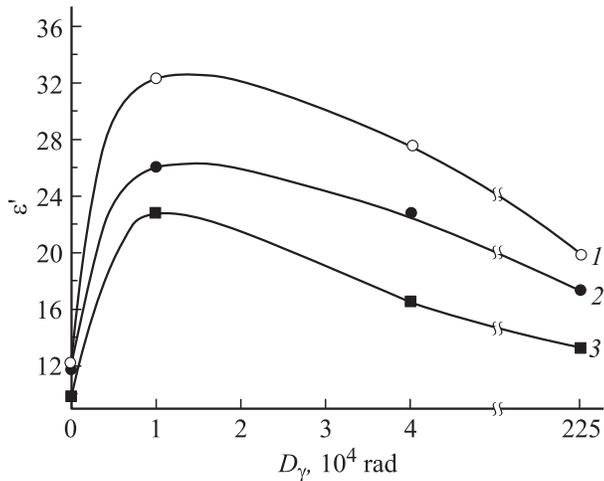


Рис. 1. Зависимости диэлектрической проницаемости монокристалла TlInS_2 от дозы γ -облучения при различных частотах переменного электрического поля. f, Hz : 1 — $5 \cdot 10^4$, 2 — 10^5 , 3 — $3 \cdot 10^7$. $T = 300 \text{ K}$.

Аналогичные закономерности в дозовой зависимости ϵ' наблюдались также для изоструктурного соединения TlGaS_2 в [7]. При дозе γ -облучения 10^6 rad в частотной области 10^4 – 10^6 Hz диэлектрическая проницаемость TlGaS_2 увеличивалась по сравнению с ϵ' необлученного образца, а при $D_\gamma = 10^7$ – 10^8 rad в области высоких частот значения ϵ' оказались меньше, чем до облучения. При 10^8 rad происходило уменьшение значений ϵ' во всей исследованной области температур (200–370 K) и частот (10^2 – 10^6 Hz). Причину такого поведения ϵ' TlGaS_2 авторы [7] приписывают радиационно-стимулированному старению образцов, приводящего к стабилизации доменной структуры и снижению значений ϵ' [8].

В случае с TlInS_2 увеличение ϵ' при $D_\gamma = 10^4$ rad во всей изученной частотной области (рис. 1) можно связать с тем, что обычно при таких сравнительно небольших дозах облучения происходит радиационный отжиг дефектов в кристалле (эффект малых доз). При дальнейшем увеличении дозы облучения вплоть до $2.25 \cdot 10^6$ rad начинают действовать процессы миграции и перераспределения дефектов в кристалле, приводящие к радиационно-стимулированному старению образцов, что в свою очередь приводит к снижению значений ϵ' . Тот факт, что значение ϵ' облученного дозой $2.25 \cdot 10^6$ rad образца TlInS_2 оставалось большим, чем для необлученного образца, свидетельствует очевидно, о том, что эта доза облучения еще недостаточна для того, чтобы стабилизировать доменную структуру в TlInS_2 . Уменьшение значений ϵ' TlInS_2 по сравнению с ϵ' необлученного образца наблюдалось в [9] при довольно высоких дозах облучения (10^8 – $4 \cdot 10^8$ rad) в области температур 180–220 K.

Были измерены также частотные зависимости ϵ' при различных дозах γ -облучения. Обнаружена дисперсия диэлектрической проницаемости как в необлученных,

так и γ -облученных образцах TlInS_2 . Так, если до облучения значение ϵ' монокристалла TlInS_2 по мере роста частоты от $5 \cdot 10^4$ до $3.5 \cdot 10^7$ Hz уменьшалось от 12.2 до 9.8, то при $D_\gamma = 10^4$ rad в указанной области частот ϵ' уменьшалось от 32.4 до 22.9, а при $D_\gamma = 4 \cdot 10^4$ и $2.25 \cdot 10^6$ rad — от 27.7 до 16.6 и от 19.8 до 12.7 соответственно. Полученные результаты показывают, что если диэлектрическая проницаемость необлученного монокристалла TlInS_2 претерпевает 20% дисперсию в частотном диапазоне $5 \cdot 10^4$ – $3.5 \cdot 10^7$ Hz, то после γ -облучения наблюдается более ощутимая дисперсия ϵ' (рис. 2). Наблюдаемое в экспериментах монотонное уменьшение диэлектрической проницаемости монокристалла TlInS_2 с ростом частоты свидетельствует о релаксационной дисперсии.

Изучены также частотные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь в монокристалле TlInS_2 при различных дозах γ -облучения (рис. 3).

Характер изменения $\text{tg} \delta$ с частотой показывает, что в TlInS_2 как до, так и после облучения дозами 10^4 – $2.25 \cdot 10^6$ rad имеют место потери на электропроводность вплоть до частоты $f = 10^7$ Hz, выше которой

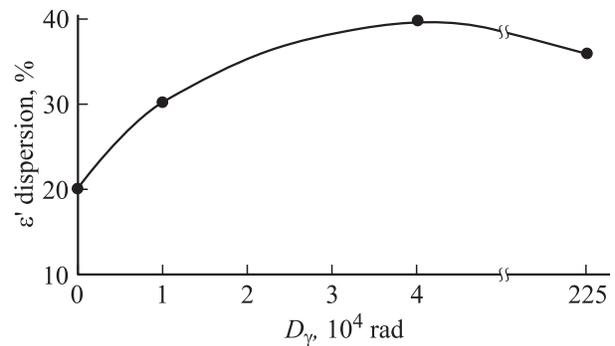


Рис. 2. Дозовая зависимость дисперсии диэлектрической проницаемости монокристалла TlInS_2 .

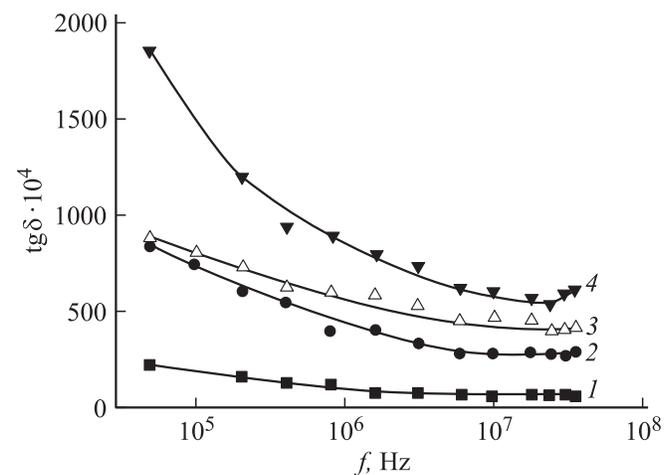


Рис. 3. Частотные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь монокристалла TlInS_2 при различных дозах γ -облучения. D_γ, rad : 1 — 0, 2 — 10^4 , 3 — $4 \cdot 10^4$, 4 — $2.25 \cdot 10^6$.

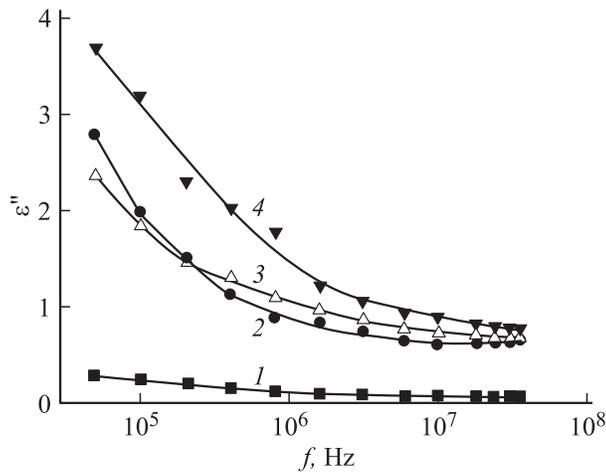


Рис. 4. Частотные зависимости мнимой составляющей комплексной диэлектрической проницаемости монокристалла TlInS₂ при различных дозах γ -облучения. D_γ , rad: 1 — 0, 2 — 10^4 , 3 — $4 \cdot 10^4$, 4 — $2.25 \cdot 10^6$.

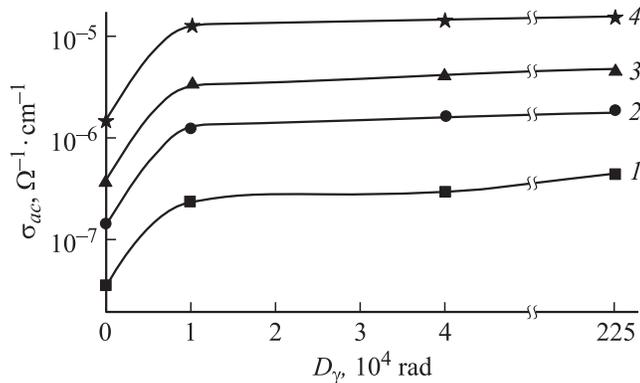


Рис. 5. Дозовые характеристики ac -проводимости монокристалла TlInS₂ при различных частотах f , Hz: 1 — $4 \cdot 10^5$, 2 — $3.2 \cdot 10^6$, 3 — 10^7 , 4 — $3.5 \cdot 10^7$.

начинают проявляться релаксационные потери. Доля релаксационных потерь была наиболее высока для максимально ($D_\gamma = 2.25 \cdot 10^6$ rad) облученного TlInS₂ (высокочастотная ветвь кривой 4 на рис. 3). Из рис. 3 видно, что по мере увеличения дозы от 0 до $2.25 \cdot 10^6$ rad $\text{tg } \delta$ во всем изученном диапазоне частот растет и претерпевает более ощутимую дисперсию. Аналогичные закономерности наблюдались и для частотных зависимостей мнимой составляющей комплексной диэлектрической проницаемости ϵ'' кристалла TlInS₂ при различных дозах γ -облучения (рис. 4).

Далее были изучены дозовые характеристики ac -проводимости монокристалла TlInS₂ при различных частотах (рис. 5). Из приведенных на рис. 5 зависимостей $\sigma_{ac}(D_\gamma)$ видно, что с увеличением дозы облучения σ_{ac} растет при всех частотах. При дозе $D_\gamma = 10^4$ rad изменение проводимости по сравнению с σ_{ac} необлученного образца TlInS₂ было довольно значительным ($\sigma_{ac}^\gamma/\sigma_{ac} \approx 9$). Однако по мере дальнейшего накопления

дозы в образце рост σ_{ac} замедлялся. В области сравнительно высоких доз облучения ($D_\gamma > 10^4$ rad) наклон участков зависимости $\sigma_{ac}(D_\gamma)$ уменьшался с увеличением частоты переменного электрического поля, а при $f = 3.5 \cdot 10^7$ Hz σ_{ac} практически не зависела от D_γ . В общем в изученной области частот максимальное увеличение ac -проводимости монокристалла TlInS₂ за счет γ -облучения составляло $\sigma_{ac}^\gamma/\sigma_{ac} \approx 13$.

На рис. 6 представлены частотные зависимости ac -проводимости исследуемого монокристалла TlInS₂ при 300 K до облучения (кривая 1) и после облучения (кривые 2–4). Отметим, что ac -проводимость существенно превышала dc -проводимость монокристалла TlInS₂ ($\sigma_{dc} = 2 \cdot 10^{-11} \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$). Кривые 1–4 на рис. 6 состояли из участков $\sigma_{ac} \sim f^{0.8}$, сменяющихся при $f > 10^7$ Hz суперлинейными участками $\sigma_{ac} \sim f^{1.3}$. Увеличение дозы облучения приводило к смещению зависимостей $\sigma_{ac}(f)$ вверх. При этом диапазон частот $f = 5 \cdot 10^4 - 10^7$ Hz, в котором имел место закон $\sigma_{ac} \sim f^{0.8}$, характерный для прыжковой проводимости [10], оставался почти неизменным для всех кривых на рис. 6. Этот экспериментальный факт свидетельствует о том, что среднее расстояние R и время τ прыжков не претерпевают каких-либо существенных изменений за счет γ -облучения образца TlInS₂.

Согласно теории прыжковой проводимости, на переменном токе среднее расстояние прыжков определяется по формуле [10]

$$R = (1/2\alpha) \ln(v_{\text{ph}}/f), \quad (1)$$

где α — постоянная спада волновой функции локализованного носителя заряда $\Psi \sim e^{-\alpha r}$; $\alpha = 1/a$ (a — радиус локализации); v_{ph} — фононная частота; $1/f = \tau$ — среднее время прыжков. Экспериментально τ^{-1} находится как средняя частота, при которой наблюдается зависимость $f^{0.8}$ для σ_{ac} -проводимости. Из полученных нами зависимостей $\sigma_{ac}(f)$ (рис. 6) для τ получено

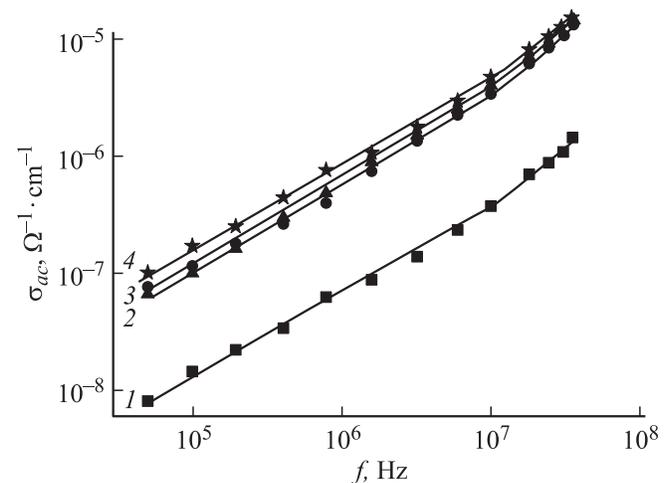


Рис. 6. Дисперсия ac -проводимости монокристалла TlInS₂ до облучения (1) и после γ -облучения (2–4). D_γ , rad: 2 — 10^4 , 3 — $4 \cdot 10^4$, 4 — $2.25 \cdot 10^6$.

Параметры локализованных состояний в запрещенной зоне монокристалла TlInS_2 , полученные из высокочастотных диэлектрических измерений

Доза γ -облучения D_γ, rad	$N_F, \text{eV}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$	$\Delta E, \text{eV}$	N_t, cm^{-3}	N_{rd}, cm^{-3}
0	$5.2 \cdot 10^{18}$	0.14	$7.3 \cdot 10^{17}$	0
10^4	$1.5 \cdot 10^{19}$	0.05	$7.5 \cdot 10^{17}$	$2 \cdot 10^{16}$
$4 \cdot 10^4$	$1.6 \cdot 10^{19}$	0.047	$7.5 \cdot 10^{17}$	$2 \cdot 10^{16}$
$2.25 \cdot 10^4$	$1.9 \cdot 10^{19}$	0.04	$7.6 \cdot 10^{17}$	$3 \cdot 10^{16}$

значение $0.2 \mu\text{s}$. Вычисленное по формуле (1) значение R для исследуемого монокристалла TlInS_2 составило 86 \AA . При вычислении R для радиуса локализации монокристалла TlInS_2 взято значение $a = 14 \text{ \AA}$ по аналогии с бинарными сульфидами [11]. Значение ν_{ph} для TlInS_2 порядка 10^{12} Hz [12].

Экспериментальные результаты позволили оценить плотность локализованных состояний вблизи уровня Ферми (N_F), по которым осуществляются прыжки носителей заряда [13],

$$\sigma_{ac}(f) = (\pi^3/96)e^2kTN_F^2a^5f[\ln(\nu_{\text{ph}}/f)]^4, \quad (2)$$

где e — заряд электрона, k — постоянная Больцмана.

Полученные значения N_F при различных дозах облучения приведены в таблице, из которой следует, что по мере накопления дозы γ -облучения в кристалле TlInS_2 N_F увеличивается. По формуле [10]

$$\Delta E = 3/(2\pi R^3 N_F) \quad (3)$$

оценен энергетический разброс локализованных состояний ΔE в окрестности уровня Ферми. Значения ΔE до и после γ -облучения различными дозами также представлены в таблице, откуда видно, что с ростом D_γ полоса энергий ΔE сужается. Вычисленные по формуле

$$N_t = N_F \Delta E \quad (4)$$

концентрации ловушечных состояний в TlInS_2 до и после γ -облучения также приведены в таблице.

По разности значений N_t после и до γ -облучения можно определить концентрацию радиационных дефектов ($N_{rd} = N_t^y - N_t^0$) в монокристалле TlInS_2 . Вычисленные значения N_{rd} после различных доз γ -облучения D_γ монокристалла TlInS_2 приведены в последнем столбце таблицы. Видно, что концентрация радиационных дефектов N_{rd} в монокристалле TlInS_2 не вносит сколь-нибудь существенного вклада в N_t .

Достаточно высокая концентрация локализованных состояний в запрещенной зоне приближает рассматриваемые кристаллы по энергетической структуре к аморфным полупроводникам. Для аморфного состояния характерно наличие сильно деформированных и даже разорванных химических связей, которые склонны к

проявлению акцепторных свойств. Роль этих дефектов особенно велика для слоистых (или цепочечных) кристаллов, каковыми и являются монокристаллы TlInS_2 . На фоне изначально высокой концентрации локализованных в запрещенной зоне TlInS_2 состояний, обусловленных наличием различных дефектов, рождение новых дефектов за счет γ -облучения не вносит ощутимого вклада. Облучение монокристалла TlInS_2 не только вызывает рождение новых (радиационных) дефектов, но и, как было отмечено выше, стимулирует отжиг, миграцию и перераспределение имеющихся в кристалле дефектов [8,14], что и приводит, по-видимому, к сужению ширины энергетического распределения локализованных состояний.

Таким образом, на основе исследования частотных зависимостей диэлектрических коэффициентов и ac -проводимости γ -облученного монокристалла TlInS_2 установлены природа диэлектрических потерь, механизм переноса заряда, оценены плотность и энергетический разброс состояний вблизи уровня Ферми, среднее время и расстояние прыжков, а также концентрация глубоких ловушек, ответственных за проводимость на переменном токе. Показано, что за счет γ -облучения монокристалла TlInS_2 можно управлять его диэлектрическими коэффициентами, а также величиной проводимости на переменном токе. Это создает возможности для использования указанных монокристаллов в качестве активных элементов гамма-детекторов.

Список литературы

- [1] О.Б. Плющ, А.У. Шелег. Кристаллография **44**, 5, 873 (1999).
- [2] Н.А. Боровой, Ю.П. Гололобов, А.Н. Горб, Г.Л. Исаенко. ФТТ **50**, 10, 1866 (2008).
- [3] С.Н. Мустафаева, В.А. Алиев, М.М. Асадов. ФТТ **40**, 1, 48 (1998).
- [4] С.Н. Мустафаева, М.М. Асадов, В.А. Рамазанзаде. ФТТ **38**, 1, 14 (1996).
- [5] С.Н. Мустафаева, М.М. Асадов, В.А. Рамазанзаде. Неорг. материалы **31**, 3, 318 (1995).
- [6] Е.М. Kerimova, S.N. Mustafæva, D.A. Guseinova. Presentations of I Eurasian Conf. on nuclear science and its applications. Ankara, Turkey (2001). V.2. P. 932.
- [7] А.У. Шелег, К.В. Иодковская, Н.Ф. Куриловч. ФТТ **45**, 1, 68 (2003).
- [8] Е.В. Пешиков. Радиационные эффекты в сегнетоэлектриках. Ташкент (1986). 136 с.
- [9] Р.М. Сардарлы, О.А. Самедов, И.Ш. Садыхов, А.И. Наджафов, Ф.Т. Салманов. ФТТ **47**, 9, 1665 (2005).
- [10] Н. Мотт, Э. Девис. Электронные процессы в некристаллических веществах. Мир, М. (1974). 472 с.
- [11] V. Augelli, C. Manfredotti, R. Murri, R. Piccolo, L. Vasaneli. Nuovo Cimento B **38**, 2, 327 (1977).
- [12] К.Р. Аллахвердиев, Е.А. Виноградов, Р.Х. Нани, Э.Ю. Салаев, Р.М. Сардарлы, Н.Ю. Сафаров. В кн.: Физические свойства сложных полупроводников. Элм, Баку (1982). С. 55.
- [13] М. Pollak. Phil. Mag. **23**, 519 (1971).
- [14] В.С. Вавилов, Н.П. Кекелидзе, Л.С. Смирнов. Действие излучений на полупроводники. Наука, М. (1988). 191 с.