

Особенности прыжковой проводимости в висмутсодержащей оксидной слоистой керамике

© А.М. Солодуха, З.А. Либерман

Воронежский государственный университет,
394693 Воронеж, Россия

(Поступила в Редакцию 5 декабря 2000 г.
В окончательной редакции 5 марта 2001 г.)

Исследована динамическая электропроводность висмутсодержащей оксидной слоистой керамики состава $\text{Sr}_2\text{Bi}_2\text{TiNb}_2\text{O}_{12}$ в слабом переменном поле на частотах 0.5–500 кГц в температурном интервале 300–700 К. Показано, что при высоких температурах проводимость хорошо описывается теоретическими представлениями в рамках метода эффективной среды и соответствует двумерному прыжковому переносу. Проведена оценка величины концентрации узлов системы, по которым осуществляются прыжки носителей заряда.

1. Несмотря на то что керамические материалы находят широкое применение в различных электротехнических устройствах благодаря своим уникальным свойствам, механизмы электропроводности у них еще до конца не поняты. Это объясняется тем, что керамика является сложным объектом для исследования, так как обладает неоднородной поликристаллической структурой, содержащей, как правило, большое количество пор. В такой структуре может существовать одновременно несколько различных механизмов электропереноса, которые создают достаточно сложную общую картину. При этом важно определить, преобладает ли перенос за счет переходов носителей через потенциальные барьеры на границах кристаллитов или основную роль играет проводимость по межкристаллитным границам, а свойства самих кристаллитов завуалированы.

Целью настоящей работы является исследование процессов проводимости на переменном токе в керамике состава $\text{Sr}_2\text{Bi}_2\text{TiNb}_2\text{O}_{12}$. Это соединение относится к слоистым висмутсодержащим перовскитоподобным оксидам с общей формулой $A_{m-1}\text{Bi}_2\text{B}_m\text{O}_{3m+3}$ [1]. В нашем случае $m = 3$, роль иона А играет ион Sr, а элемент B_3 заменен на изовалентную комбинацию $\text{B}_2\text{B}'$, где $\text{B}_2 = \text{Ti}_2$, $\text{B}' = \text{Nb}$. Образцы в виде таблеток толщиной около 2 мм были изготовлены по стандартной керамической технологии. Плотность образцов составила 6.9 г/см³. Electroды получали вжиганием серебряной пасты. Измерения проводились в интервале температур 300–700 К в диапазоне частот 0.5–500 кГц с помощью импедансметра ВМ-507 по методике, описанной в [2]. Максимальная погрешность при определении модуля импеданса и угла сдвига фаз не превышала ±6%. Напряженность измерительного поля составляла менее 10 В/см. Данные эксперимента обрабатывались на компьютере с применением процедуры сглаживания.

2. На рис. 1, а показана зависимость проводимости G образца от температуры для различных частот измерительного поля. Видно, что по мере увеличения температуры величина G несколько уменьшается (что особенно заметно на низких частотах), а при $T > 450$ К зависимость принимает вид, характерный для полупро-

водниковых соединений. Поэтому в данной работе наше внимание было сосредоточено на области температур выше 450 К, где была обнаружена типичная для прыжкового переноса зависимость $\text{Re}\sigma(\omega) \sim \omega^s$; здесь σ — эффективная удельная проводимость, ω — циклическая частота переменного электрического поля ($\omega = 2\pi f$, где f — частота в Hz), s — параметр ($s = 0.65$ при 700 К). Однако данная зависимость еще не дает представления о конкретном механизме, а для такой системы, какой является исследуемая керамика, дисперсия может быть связана как с подвижными носителями, так и с диполями. Как видно из рис. 1, b, c, дисперсия проводимости гораздо сильнее, чем дисперсия емкости, и тогда представление результатов более корректно проводить через значения комплексного импеданса Z^* и комплексного диэлектрического модуля M^* , как это было показано в [3]. Для анализа механизмов прыжковой проводимости мы использовали разработанный в рамках метода эффективной среды теоретический подход, описанный в работах [4,5], где рассмотрение ведется с помощью безразмерной функции, обратной тангенсу угла диэлектрических потерь,

$$\text{ctg } \delta = (\epsilon' - \epsilon_\infty)/\epsilon'', \quad (1)$$

$$\epsilon'' = [G(\omega) - G(0)]/\omega C_0. \quad (2)$$

Здесь ϵ' и ϵ'' — действительная и мнимая части комплексной диэлектрической проницаемости, $G(\omega)$ и $G(0)$ — действительная часть полной проводимости для переменного и постоянного тока соответственно, C_0 — емкость измерительной ячейки, ϵ_∞ — значение действительной части диэлектрической проницаемости при $\omega \rightarrow \infty$.

Как следует из (1) и (2), для анализа результатов эксперимента необходимо определить значение сопротивления по постоянному току $R_0 = 1/G(0)$ и ϵ_∞ . Последняя получается из формулы $C_\infty = \epsilon_\infty C_0$, где C_∞ — электроемкость образца при $\omega \rightarrow \infty$.

Для исследуемых образцов только при температурах около 700 К форма кривых годографа Z^* и M^* позволила

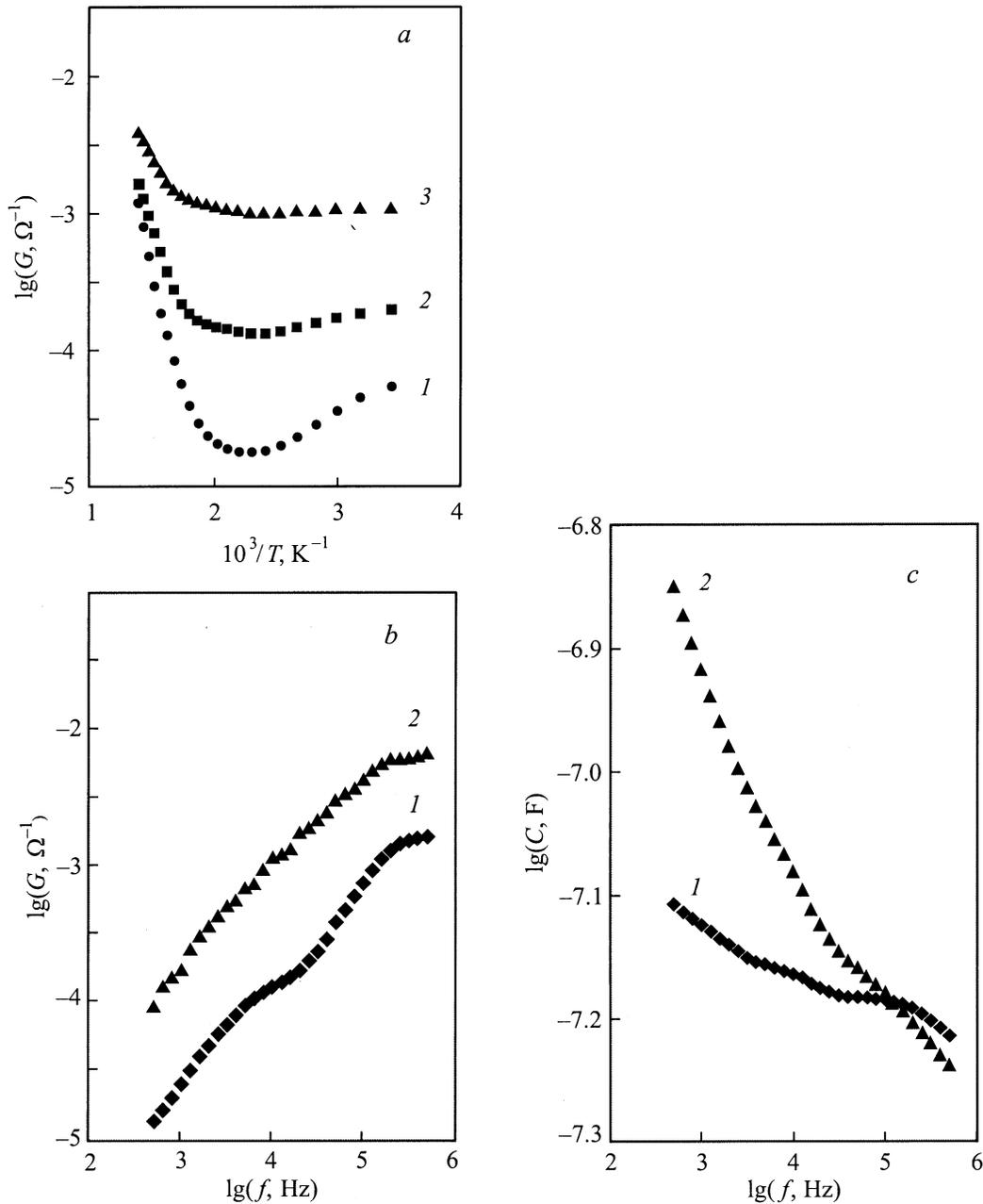


Рис. 1. *a* — зависимость проводимости образца от обратной температуры при частотах, равных 1 (*1*), 10 (*2*) и 100 kHz (*3*). *b, c* — зависимости проводимости и емкости от частоты измерительного поля при температурах 500 (*1*) и 700 К (*2*).

провести экстраполяцию при $\omega \rightarrow 0$ и $\omega \rightarrow \infty$ и определить значения $R_0 = 10^6 \Omega$ и $\epsilon_\infty = 235$ (рис. 2). Полученная зависимость котангенса угла диэлектрических потерь от логарифма частоты для 700 К показана на рис. 3, из которого видно, что экспериментальная кривая имеет линейный участок в области малых частот; согласно [5], это является характерной чертой прыжкового переноса в двумерных системах. Тогда на основании данных из работы [5] можно записать

$$\text{ctg } \delta = (2/\pi) \ln(32W_c/\omega), \quad (3)$$

$$W_c = \nu_{\text{ph}} \exp[(-4\sqrt{\ln 2} \alpha N^{-1/2})/\sqrt{\pi}], \quad (4)$$

где W_c — вероятность критического прыжка, которая соответствует вероятности возникновения бесконечного кластера в теории протекания, α — величина, обратная длине локализации, N — концентрация узлов в системе, ν_{ph} — частота фононов.

На рис. 3 также видно, что наклон низкочастотного участка равен $2/\pi$ (или $2/\pi \lg e$ при переходе к десятичному логарифму), т.е. согласуется с коэффициентом, предсказанным теоретически в работе [5], согласно которой этот коэффициент не зависит от величины параметра

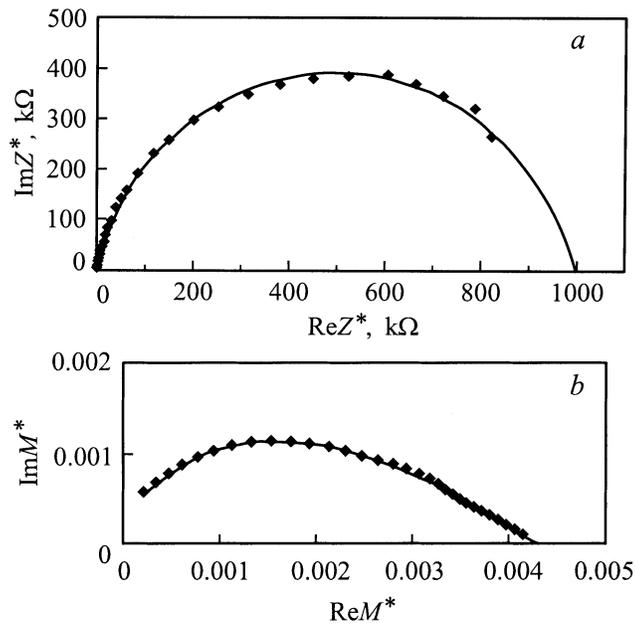


Рис. 2. Годограф импеданса (*a*) и диэлектрического модуля (*b*) при температуре 700 К.

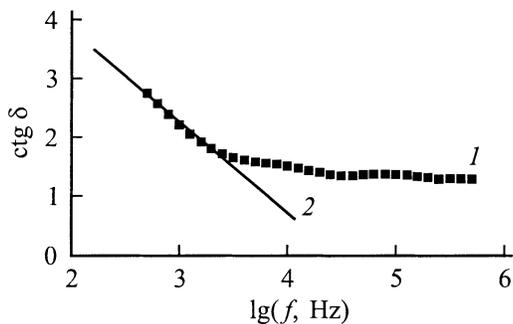


Рис. 3. Зависимость котангенса угла диэлектрических потерь от частоты измерительного поля при температуре образца 700 К (*1*) и прямая с наклоном $2/\pi \lg e$ (*2*).

беспорядка $\alpha N^{-1/2}$ и является специфической особенностью частотной зависимости проводимости в двумерных системах при прыжковом механизме переноса. В нашем случае из этого следует предположение о том, что данный механизм отвечает переносу по межкристаллитным границам и поверхностям пор в исследуемых образцах.

3. Используя выражения (3) и (4), можно провести оценку величины N . Для этого экстраполируя низкочастотного участка зависимости $\text{ctg } \delta$ от частоты (см. рис. 3) до пересечения с осью ординат при значении $\lg f = 0$ определяем соответствующую величину $\text{ctg } \delta = 6.6$. Полагая $\nu_{\text{ph}} = 10^{12}$ Hz, а $\alpha = 0.8$ nm, как это сделано в [6], получим значение $N \approx 10^{17} \text{ m}^{-2}$, которое укладывается в допустимые пределы.

Представляет также интерес оценить еще один параметр теории — величину отношения среднего расстояния между узлами к длине локализации

$\kappa = 4\alpha N^{-1/2}/\sqrt{\pi}$, которая в нашем случае равна 9 и попадает в диапазон возможных значений, рассмотренных в [5].

Список литературы

- [1] Е.Г. Фесенко, А.Т. Шуваев, В.Г. Смотраков, Г.А. Гегузина, В.Д. Комаров, В.Г. Гавриляченко, Е.С. Гагарина. Неорг. материалы **30**, 8, 1057 (1994).
- [2] А.М. Солодуха, О.К. Жуков. Измер. техника **6**, 68 (1983).
- [3] J.R. Macdonald. Phys. Rev. **B49**, 14, 9428 (1994).
- [4] В.В. Брыксин, М.Н. Дьяконов, В.М. Муждаба, С.Д. Ханин. ФТТ **23**, 5, 1516 (1981).
- [5] В.В. Брыксин, П. Кляйнерт. ФТТ **37**, 6, 1637 (1995).
- [6] Н. Мотт, Э. Дэвис. Электронные процессы в некристаллических веществах. Мир, М. (1982). Т. 1. С. 260.