

Особенности проводимости γ -облученных кристаллов $TlGaTe_2$ с наноцепочечной структурой

© Р.М. Сардарлы[¶], О.А. Самедов, А.П. Абдуллаев*, Э.К. Гусейнов, Ф.Т. Салманов, Г.Р. Сафарова

Институт радиационных проблем Национальной академии наук Азербайджана,
AZ1141 Баку, Азербайджан

* Институт физики Национальной академии наук Азербайджана,
AZ1143 Баку, Азербайджан

(Получена 12 октября 2009 г. Принята к печати 20 октября 2009 г.)

Изучены температурные зависимости электропроводности $\sigma(T)$ и вольт-амперные характеристики одномерных монокристаллов $TlGaTe_2$, подвергнутых различным дозам γ -облучения, в обеих геометриях эксперимента — по наноцепочкам, параллельным тетрагональной оси кристалла ($\sigma_{||}$) и перпендикулярно ей (σ_{\perp}). Показано, что зависимость $\sigma(T)$, измеренная в омической области вольт-амперной характеристики, имеет прыжковый характер и описывается в приближении Мотта. Рассчитаны значения плотности локализованных состояний N_F , энергии активации E_a , длины прыжков R , разность между энергиями состояний ΔE вблизи уровня Ферми и концентрации глубоких ловушек N_l . Исследованы также вольт-амперные характеристики области более резкого роста тока. Показано, что эта область вольт-амперных характеристик описывается в рамках термополевого эффекта Пула–Френкеля. Определены значения концентрации ионизированных центров N_f , длина свободного пробега λ , значения коэффициента Френкеля β , форма потенциальной ямы в исходных и облученных (250 Мрад) кристаллах $TlGaTe_2$. Показано, что анизотропия проводимости изменяется при радиационном воздействии, приводящем к трансляционной упорядоченности наноцепочек.

1. Введение

Полупроводниковое соединение $TlGaTe_2$, кристаллизуется в тетрагональной пространственной группе D_{4h}^{18} , имеет одномерную (1D) цепочечную (rod-like) структуру. Из соединений этой группы наиболее изучены соединения $TlSe$ и TlS (являющиеся структурными аналогами $TlGaTe_2$) [1–3].

Электрические свойства соединения $TlGaTe_2$ изучены в работах [4,5]. Расчет зонной структуры $TlGaTe_2$, выполненный методом псевдопотенциала, приводится в работе [6]. Расчеты показали, что потолок валентной зоны находится в высокосимметричной точке T на поверхности зоны Бриллюэна, а дно зоны проводимости на линии D . Ширина запрещенной зоны, полученная на основе проведенных расчетов, оказалась равной 0.86 эВ.

Температурная зависимость теплоемкости и рентгенографические исследования $TlGaTe_2$ изучены в работах [7,8]. Эксперименты выполнены в температурной области 5–300 К, были рассчитаны термодинамические параметры кристалла, показано наличие фазового перехода второго рода при температуре 98.5 К. В работе [9] исследованы вольт-амперные характеристики кристалла $TlGaTe_2$, обнаружен эффект отрицательного дифференциального сопротивления и вольтовы осцилляции в области отрицательного дифференциального сопротивления. Фотоэмиссионные спектры и зонная структура $TlGaTe_2$ исследованы в работе [10]. Показано хорошее согласие между экспериментальными данными и расчетом зонной структуры в приближении плоских волн.

Наличие псевдошли в плотности состояний, предельно анизотропная (1D) наноцепочечная (rod-like) структура в кристаллах этого класса позволяют ожидать осо-

бенностей в анизотропии электрической проводимости, связанных с низкоразмерным характером структуры.

Цель данной работы состоит в установлении особенностей анизотропии проводимости кристаллов $TlGaTe_2$ (как в линейной, так и в нелинейной областях вольт-амперной характеристики) и выявлении ее связи как со структурными особенностями кристалла, так и с радиационными дефектами. Кроме того, провести анализ проводимости кристалла в рамках моделей Мотта и Пула–Френкеля.

2. Детали эксперимента и обсуждение полученных результатов

Образцы соединения $TlGaTe_2$ синтезировались сплавлением исходных компонентов (чистота не менее 99.99) в вакуумированных кварцевых ампулах, а их монокристаллы выращивались модифицированным методом Бриджмена. Стехиометрия полученного соединения, однозначность и однородность контролировались рентгенографическим и дериватографическим анализами. Приготовленные для исследования свежесколотые образцы, в которых кристаллографическая ось с кристалла ориентирована в плоскости скола, имели прямоугольный вид и толщину порядка 0.5 мм. К образцам наносились индивидуальные контакты, омичность которых контролировалась перед каждым измерением.

Измерения электропроводности $\sigma(T)$ проводились на постоянном токе четырехзондовым методом в двух направлениях — параллельном $\sigma_{||}$ и перпендикулярном σ_{\perp} тетрагональной оси с кристалла и выполнены в температурном интервале 90–300 К. После предварительных измерений величин $\sigma_{||}(T)$ и $\sigma_{\perp}(T)$ образцы подвергались воздействию γ -излучения от стандартного

[¶] E-mail: sardarli@yahoo.com

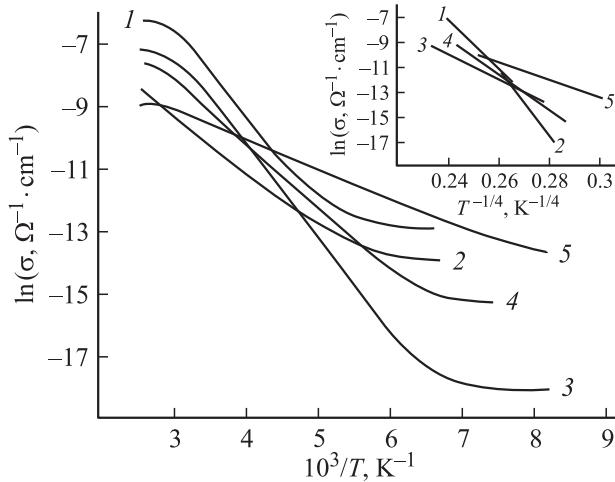


Рис. 1. Температурные зависимости электропроводности $TlGaTe_2$ $\sigma_{\parallel}(T)$ до облучения (кривая 1) и подвергнутых γ -облучению (кривые 2–5) дозами, Мрад: 2 — 100, 3 — 150, 4 — 200, 5 — 250. На вставке — те же зависимости в координатах Мотта.

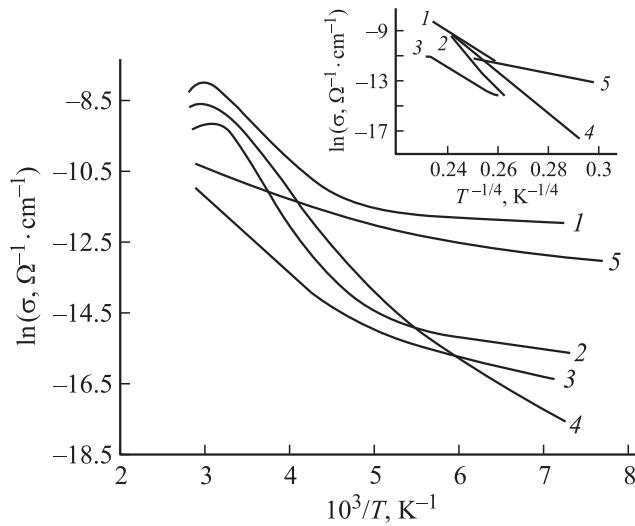


Рис. 2. Температурные зависимости электропроводности $\sigma_{\perp}(T)$ образцов $TlGaTe_2$ до облучения (кривая 1) и подвергнутых γ -облучению (кривые 2–5) дозами, Мрад: 2 — 100, 3 — 150, 4 — 200, 5 — 250. На вставке — те же зависимости в координатах Мотта.

источника Co^{60} . Доза облучения накапливалась постепенно в каждом из исследованных образцов посредством последовательных экспозиций γ -воздействия до величины 250 Мрад. При этом измерения $\sigma_{\parallel}(T)$ и $\sigma_{\perp}(T)$ проводились после каждой экспозиции облучения.

Температурные зависимости электропроводности $\sigma_{\parallel}(T)$ и $\sigma_{\perp}(T)$ исходных образцов $TlGaTe_2$ (кривые 1) и подвергнутых γ -облучению (кривые 2–5) приведены на рис. 1 и 2. В исследованном температурном интервале доминирует проводимость термовозбужденных носителей заряда в разрешенной зоне. Понижение температуры

сопровождается быстрым убыванием концентрации носителей заряда, т. е. при температурах ниже 220 К для $\sigma_{\parallel}(T)$ и 180 К для $\sigma_{\perp}(T)$ эти области представляют собой области вымораживания носителей заряда.

Как видно из рис. 1 и 2, в температурном интервале $220 < T < 300$ К $\sigma_{\parallel}(T) \approx \sigma_{\perp}(T)$. Это свидетельствует о слабой анизотропии эффективных масс носителей заряда в монокристаллах $TlGaTe_2$, вытекающей из расчетов зонной структуры этих кристаллов. Однако с дальнейшим понижением температуры (при $T < 200$ К) удельная проводимость $\sigma_{\parallel}(T)$, измеренная вдоль цепочек, значительно превосходит удельную проводимость $\sigma_{\perp}(T)$, измеренную перпендикулярно им, т. е. при низких температурах проводимость в направлении сильной связи существенно превышает проводимость в направлении слабой связи. Следует отметить, что такой характер анизотропии проводимости характерен для цепочных кристаллов $TlInTe_2$ [11], изоструктурных $TlGaTe_2$.

При понижении температуры вплоть до значения, при котором начинается термоактивация носителей в зону проводимости, зависимость $\sigma(T)$ становится линейной, что характерно для зонной проводимости. При γ -облучении, как показывают экспериментальные результаты, в запрещенной зоне кристалла возникают примесные энергетические уровни, обусловленные радиационными дефектами. Термозаполнение этих уровней происходит при температуре, более низкой по сравнению с необлученным кристаллом, т. е. расширяется температурная область существования термоактивационной проводимости. Эта температурная область характеризуется также тем, что в ней происходит температурное заполнение ловушечных центров, и локализованные заряженные примеси оказываются нейтральными. С ростом дозы облучения до 100 Мрад проводимость уменьшается, в интервале доз 100–200 Мрад остается постоянной, дальнейший рост дозы облучения приводит к росту проводимости (кривая 4 на рис. 1 и кривая 5 на рис. 2). Доминирующую роль в этих процессах играют заряженные дефекты, которые возникают в результате γ -облучения.

Такой характер проводимости можно объяснить, если учесть, что дозы выше 150–200 Мрад для этих кристаллов являются, по всей видимости, лишь легкой ионизирующей радиацией и играют роль активирующего фактора для таких процессов, как миграция дефектов, вызванных межцепочечной разупорядоченностью, и переход метастабильных состояний в стабильные, т. е. наблюдается радиационно-стимулированное залевивание структурных дефектов, приводящее к росту электрической проводимости кристалла.

В табл. 1 сведены рассчитанные в приближении Мотта значения плотности локализованных состояний N_F , энергии активации E_a , длины прыжков R , разности между энергиями состояний ΔE вблизи уровня Ферми и концентрации глубоких ловушек N_l при различных дозах облучения. Как видно из табл. 1, наблюдается резкий рост длины прыжков носителей только при измерениях перпендикулярно цепочкам (σ_{\perp}), при дозе 150 Мрад

Таблица 1.

Доза, Мрад	Направление проводимости	$R, \text{\AA}$	$N_F, \text{эВ}^{-1}\text{см}^{-3}$	$E_a, \text{эВ}$	$\Delta E, \text{эВ}$	$N_t \text{ см}^{-3}$
0	σ_{\parallel}	87.32	$8.03 \cdot 10^{18}$	0.096	0.0446	$0.36 \cdot 10^{18}$
	σ_{\perp}	86.46	$8.35 \cdot 10^{18}$	0.095	0.0442	$0.37 \cdot 10^{18}$
100	σ_{\parallel}	91.24	$6.73 \cdot 10^{18}$	0.100	0.0936	$0.63 \cdot 10^{18}$
	σ_{\perp}	108.6	$3.35 \cdot 10^{18}$	0.119	0.0555	$0.19 \cdot 10^{18}$
150	σ_{\parallel}	88.07	$6.17 \cdot 10^{18}$	0.102	0.0477	$0.29 \cdot 10^{18}$
	σ_{\perp}	112	$2.97 \cdot 10^{18}$	0.123	0.0572	$0.17 \cdot 10^{18}$
200	σ_{\parallel}	92.15	$6.47 \cdot 10^{18}$	0.101	0.0471	$0.30 \cdot 10^{18}$
	σ_{\perp}	99.79	$4.70 \cdot 10^{18}$	0.110	0.0510	$0.24 \cdot 10^{18}$
250	σ_{\parallel}	81.79	$1.04 \cdot 10^{19}$	0.090	0.0418	$0.04 \cdot 10^{19}$
	σ_{\perp}	88.46	$7.62 \cdot 10^{18}$	0.097	0.0452	$0.74 \cdot 10^{18}$

длина перескока составляет 112\AA . При этой дозе и при этой геометрии эксперимента расчеты показывают минимальную концентрацию плотности локализованных состояний ($2.97 \cdot 10^{18} \text{ эВ}^{-1}\text{см}^{-3}$).

Таким образом, до доз в 150 Мрад для σ_{\perp} происходит залечивание дефектов, вызванных цепочечной одномерной (1D) разупорядоченностью (т.е. происходит радиационный отжиг, приводящий к трансляционному упорядочению цепочек Ga–Te₂–Ga–Te₂), а при больших дозах радиации возникают собственно радиационные (точечные) дефекты.

В сильном электрическом поле (в нелинейной области вольт-амперной характеристики), когда перепад потенциальной энергии электрона на длине характерного прыжка $R(T)$ сравнивается с шириной полосы энергий вокруг уровня Ферми ΔE , в которой происходят прыжки, электрон может двигаться в направлении поля, испуская фононы при каждом перескоке. Согласно Мотту [12], ток в этом случае не зависит от температуры и растет с увеличением поля по закону

$$I(E) \propto e^{-(E_0/E)^{1/2}}. \quad (1)$$

На рис. 3 для области резкого роста тока в вольт-амперной характеристике (ВАХ) кристалла TlGaTe₂ представлены рассчитанные зависимости электропроводности от электрического поля при температурах 90 и 300 К в координатах $\ln \sigma = f(\sqrt{E})$. По Полу-Френкелю [13], экспоненциальный рост полевой зависимости проводимости представляется в виде

$$\sigma = \sigma_0 e^{\beta \sqrt{E}}, \quad (2)$$

где β — коэффициент Френкеля:

$$\beta = \frac{\sqrt{e^3}}{kT\sqrt{\pi\varepsilon\varepsilon_0}}, \quad (3)$$

ε — диэлектрическая проницаемость кристалла, k — постоянная Больцмана.

По углам наклона этих прямых были определены значения β , температурная зависимость которых иллюстрирует линейность зависимостей $\beta \propto 10^3/T$ и экстраполяцию их, сводящуюся к началу координат (рис. 4). Известно, что значение электрического поля, соответствующего началу нелинейной зависимости $\sigma(E)$, содержит информацию о концентрации дефектов, ответственных за термополевую ионизацию и проводимость кристаллов [14].

Исходя из выражения

$$N_t = \left(\frac{2e}{kT\beta} \sqrt{E_c} \right)^3 \quad (4)$$

и зная значения минимального электрического поля E_c , при которых начинается нелинейная зависимость σ от $E^{1/2}$, можно оценить концентрацию ионизованных центров N_t в TlGaTe₂.

Важное значение имеет определение формы потенциальной ямы, поскольку, зная ее форму, можно определить пространственное распределение заряда (ρ) вблизи

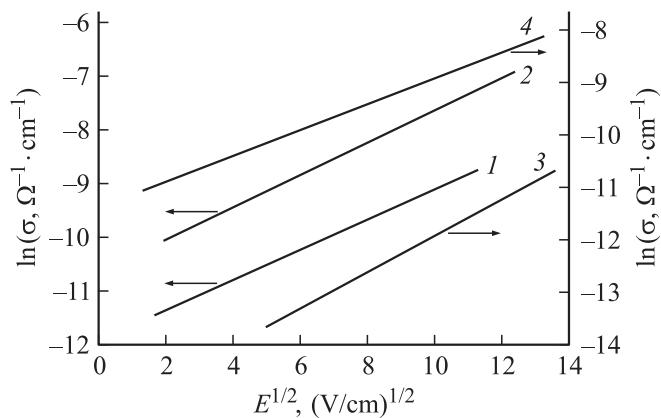


Рис. 3. Зависимости электропроводности кристаллов TlGaTe₂ от напряженности поля E : 1, 3 — σ_{\parallel} ; 2, 4 — σ_{\perp} . Измерения выполнены при $T = 200$ К. Кривые 1, 2 — до облучения; 3, 4 — после облучения кристаллов дозой 250 Мрад.

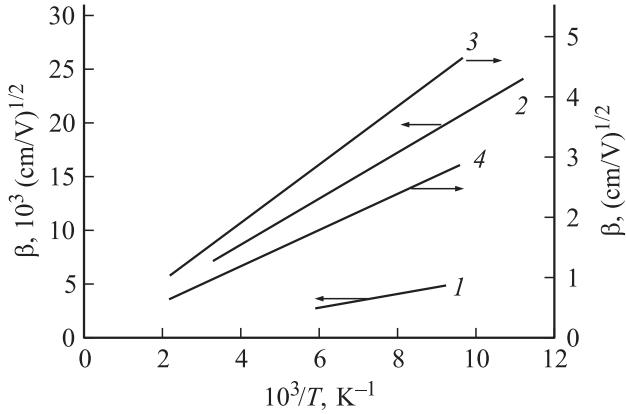


Рис. 4. Температурная зависимость коэффициента Френкеля β : 1, 3 — по σ_{\parallel} ; 2, 4 — по σ_{\perp} . Измерения выполнены при $T = 200$ К. Кривые 1, 2 — до облучения; 3, 4 — после облучения кристаллов дозой 250 Мрад.

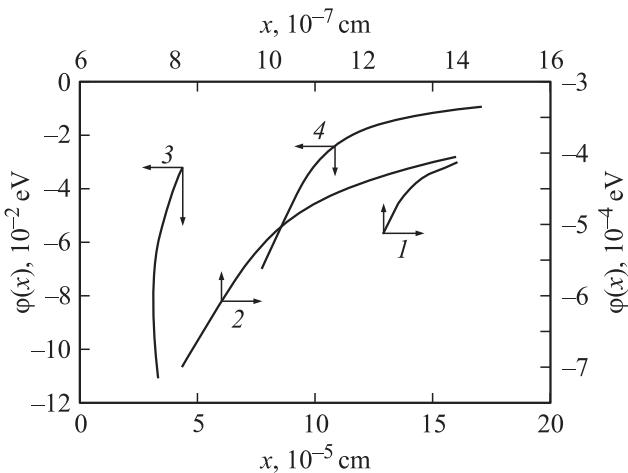


Рис. 5. Форма потенциальных ям, связанных с электронными ловушками в $TlGaTe_2$ (1, 3 — σ_{\parallel} ; 2, 4 — σ_{\perp}). Измерения выполнены при $T = 200$ К. Кривые 1, 2 — до облучения; 3, 4 — после облучения кристаллов дозой 250 Мрад.

центра (с учетом уравнения Пуассона). Функция $\phi(x)$ — потенциальная энергия, зависящая от расстояния до примесного центра или ловушки (x — расстояние вдоль направления приложенного поля), под действием электрического поля изменяется [9].

Из работ [14,15] следует, что

$$\varphi(x) = -\frac{kT\beta}{2} \sqrt{E} = eEx, \quad (5)$$

$$x = \frac{kT\beta}{2e\sqrt{E}}. \quad (6)$$

Из этих формул, используя экспериментальные данные, были определены формы потенциальных ям в $TlGaTe_2$ (рис. 5), позволяющие оценить параметры центров захвата носителей заряда. Действительно, для того чтобы электрон покинул центр, должно выполняться

условие $\varepsilon_e > U - \Delta U$ [15], где ε_e — энергия электрона, U — глубина уровня, на котором локализован электрон, ΔU — величина понижения потенциального барьера. Необходимо, чтобы электрон сохранил энергию до того момента, когда он минует точку перевала, и не растерял ее при тепловых соударениях.

Это имеет место лишь в тех случаях, когда длина свободного пробега электрона больше эффективных размеров потенциальной ямы. При этом длина свободного пробега носителей тока определяется следующей формулой [15,16]:

$$\lambda = \frac{1}{e} f(E_e) = \frac{kT\beta}{2e\sqrt{E}}. \quad (7)$$

В табл. 2 сведены рассчитанные в приближении Пула–Френкеля значения концентрации ионизованных центров N_f и длина свободного пробега λ носителей заряда.

Таким образом, как видно из табл. 2, при радиационном воздействии наблюдается сильная анизотропия рассчитанных параметров в приближении Пула–Френкеля. Анизотропия длии свободного пробега λ носителей до облучения равна $\lambda_{\perp}^{\text{init}}/\lambda_{\parallel}^{\text{init}} \approx 10$, а после облучения дозой 250 Мрад $\lambda_{\perp}^{\text{irr}}/\lambda_{\parallel}^{\text{irr}} \approx 2.7$. Таким образом, длина свободного пробега носителей после облучения дозой 250 Мрад уменьшается почти в 4 раза.

При этом длина свободного пробега электрона при измерениях вдоль цепочек после облучения растет в $\lambda_{\parallel}^{\text{irr}}/\lambda_{\parallel}^{\text{init}} \approx 150$ раз. Для измерений перпендикулярно цепочкам, имеем $\lambda_{\perp}^{\text{irr}}/\lambda_{\perp}^{\text{init}} \approx 40$ раз. Соответствующие отношения для концентраций ионизованных центров (N_f) равны соответственно: $N_{f\parallel}^{\text{irr}}/N_{f\parallel}^{\text{init}} \approx 7$ и $N_{f\perp}^{\text{irr}}/N_{f\perp}^{\text{init}} \approx 0.6 \cdot 10^{-3}$.

Таким образом, можно утверждать, что облучение в 250 Мрад приводит к некоторому упорядочению nanoцепочек (nanoигл), и, как следствие, наблюдается увеличение длины свободного пробега носителей заряда в нелинейной области ВАХ. Форма потенциальных ям при этом не изменяется.

Длина прыжков носителей заряда в линейной области ВАХ, рассчитанная в приближении Мотта, в образцах, облученных дозой 250 Мрад, в сравнении с необлученными образцами практически не меняется.

Таблица 2.

Направление проводимости	$\lambda, \text{см}$	$N_f, \text{см}^{-3}$
σ_{\parallel} исходный образец	$10.4 \cdot 10^{-7}$	$13.7 \cdot 10^{16}$
σ_{\perp} исходный образец	$9.8 \cdot 10^{-6}$	$1.8 \cdot 10^{13}$
σ_{\parallel} , облученный дозой 250 Мрад	$1.6 \cdot 10^{-4}$	$9.3 \cdot 10^{17}$
σ_{\perp} , облученный дозой 250 Мрад	$4.3 \cdot 10^{-4}$	$1.1 \cdot 10^{10}$

3. Заключение

В монокристаллах $TlGaTe_2$ при понижении температуры в интервале 300–90 К проводимость в омической области по разрешенной зоне как в направлении цепочек, так и перпендикулярно им осуществляется термовозбужденными носителями заряда. С понижением температуры перенос заряда осуществляется посредством прыжков носителей заряда по локализованным состояниям вблизи уровня Ферми, энергетически более выгодным, хотя пространственно более удаленным. При дальнейшем понижении температуры наблюдается обычная прыжковая проводимость, при которой средняя длина прыжка носителей заряда составляет величину порядка среднего расстояния между примесями и при изменении температуры не меняется.

Для кристаллов $TlGaTe_2$ (в приближении Мотта) рассчитаны значения плотности локализованных состояний N_F энергии активации E_a , длины прыжков R , разности между энергиями состояний ΔE вблизи уровня Ферми и концентрации глубоких ловушек N_t при различных дозах γ -облучения. Установлено, что облучение дозой до 250 Мрад в линейной области вольт-амперной характеристики слабо влияет на параметры, характеризующие прыжковый тип проводимости.

Анализ зависимости $\sigma \propto E^{1/2}$ с учетом термополевого эффекта Пула–Френкеля показывает, что ток в нелинейной области обусловлен слабым полевым эффектом при измерениях как в параллельном, так и перпендикулярном направлениях к тетрагональной кристаллографической оси $TlGaTe_2$.

Для исследованных кристаллов $TlGaTe_2$ определены также значения концентрации ионизованных центров N_f , длины свободного пробега λ , значения коэффициента Френкеля β , форма потенциальной ямы в необлученных и облученных кристаллах $TlGaTe_2$ при дозах 250 Мрад.

Список литературы

- [1] С.Б. Вахрушев, Б.Е. Квятковский, Н.М. Окунева, К.Р. Аллахвердиев, В.И. Слисенко, Р.М. Сардарлы. ФТТ, **26**, 1225 (1984).
- [2] М.В. Белоусов, Р.М. Сардарлы. ФТТ, **27**, 662 (1985).
- [3] Р.М. Сардарлы. *Колебательные спектры соединений A^3B^6 и $A^3B^3C_2^6$* (Баку, Изд-во Элм, 2004).
- [4] G.D. Guseinov, A.M. Ramazanzade, E.M. Kerimova, H.Z. Ismailov. Phys. Status Solidi, **22**, 117 (1967).
- [5] G.D. Guseinov, G.B. Abdullaev, S.M. Bidzinova, F.M. Seidov, M.Z. Ismailov, A.M. Pashaev. Phys. Lett., **A33**, 421 (1970).
- [6] Э.М. Годжаев, Г.С. Оруджев, Д.М. Кафарова. ФТТ, **46**, 811 (2004).
- [7] M.A. Aldzhanov, K.K. Mamedov, A.A. Abdurragimov. Phys. Status Solidi B, **131**, K35 (1985).
- [8] В.А. Алиев, М.А. Алджанов, С.Н. Алиев. Письма ЖЭТФ, **45** (9), 418 (1987).
- [9] M.P. Hanias, A.N. Anagnostopoulos. Phys. Rev. B, **47** (8), 4261 (1993).
- [10] K. Okazaki, K. Tanaka, J. Matsuno, A. Fujimori, L.F. Mattheiss, S. Iida, E. Kerimova, N. Mamedov. Phys. Rev. B, **64**, 045210 (2001).
- [11] Ф.Н. Абдуллаев, Т.Г. Керимова, Н.А. Абдуллаев. ФТТ, **47** (7), 1180 (2005).
- [12] Н.Ф. Мотт, Э.А. Девис. *Электронные процессы в некристаллических веществах* (М., Мир, 1974).
- [13] Я.И. Френкель. Сб. избр. тр. (М., Наука, 1975) т. 2, с. 217.
- [14] R.H. Hill. Phil. Mag., **23**, 59 (1971).
- [15] Н.Г. Волков, В.К. Ляпидевский. ФТТ, **14**, 1337 (1972).
- [16] Н.Н. Нильтисев, М.А. Алиджанов, О.Б. Тагиев, М.Б. Муратов. ФТП, **37**, 173 (2003).

Редактор Т.А. Полянская

Peculiarities of conductivity of the γ -irradiated $TlGaTe_2$ crystals with nano-chain structure

R.M. Sardarli, O.A. Samedov, A.P. Abdullayev, E.K. Huseynov, F.T. Salmanov, G.P. Safarova*

Institute of Radiation Problem
of National Academy of Sciences of Azerbaijan,
AZ1141 Baku, Azerbaijan

* Institute of Physics of National Academy
of Sciences of Azerbaijan,
AZ1143 Baku, Azerbaijan

Abstract Temperature dependences of conductivity $\sigma(T)$ which are measured in both geometry of experiment (parallel and normal to chains) and $I-V$ characteristics of onedimensional crystals $TlGaTe_2$ subjected to various dozes of γ -irradiation have been researched. It is shown that dependence $\sigma(T)$ measured in linear area of $I-V$ characteristics has jumping character and it is described on the Mott approximation. Values of density of licalized states N_F , energy of activation E_a , length of jumps R , a difference between energy states ΔE near to Fermi level and concentration of deep traps N_t have been calculated. $I-V$ characteristics of $TlGaTe_2$ crystals was investigated in the field of sharper rise of the current. It is shown that this area of the $I-V$ characteristics is described within the limits of thermo-field effect of the Poul-Frenkel. Values of concentration the ionized centers N_f , free length λ , value of factor of Frenkel β , the form of a potential well.