

УДК 538.956; 621.315.592

ПЕРЕХІДНА ХАРАКТЕРИСТИКА ВИСОКООМНИХ ШАРУВАТИХ КРИСТАЛІВ GaSe, ЗУМОВЛЕНА СТРУМАМИ ПОЛЯРИЗАЦІЇ

О. Флюнт

*Львівський національний університет імені Івана Франка
вул. Драгоманова, 50, 79005, Львів, Україна
flunt@electronics.wups.lviv.ua*

Розраховано перехідну характеристику $f(t)$, зумовлену струмами поляризації у високоомних кристалах GaSe, діелектрична дисперсія яких пропорційна до ω^{n-1} , де ω – кутова частота, $n \approx 0,8$, характерна для стрибкового переміщення носіїв електричного заряду. Розрахунок виконано на підставі експериментально отриманих низькочастотних діелектричних спектрів раніше запропонованим методом, в основі якого апроксимація експериментальних даних за допомогою кубічних сплайнів з подальшим аналітичним розрахунком інтегралів. Оцінено часовий інтервал, на якому перехідна характеристика достовірна з певною точністю, відповідно до частотного діапазону, на якому відомий діелектричний спектр.

Ключові слова: діелектричний спектр, перехідна характеристика, шаруватий кристал, селенід галію.

Перехідна характеристика $f(t)$, зумовлена струмами поляризації середовища, переважно описує залежний від часу струм через зразок, спричинений поляризацією матеріалу після миттєвого прикладання або миттєвого зняття постійного електричного поля і характеризує залежну від часу динаміку процесів появи або зникнення поляризації у середовищі [1, 2]. Альтернативним до підходу, під час якого динамічні процеси розглядають як залежності від часу, є підхід, коли динамічні процеси описують як залежності від частоти. У цьому разі до зразка прикладають електричне поле, напруження якого змінюється з часом за синусоїдальним законом з кутовою частотою ω . У матеріалах, які є лінійними відносно амплітуди прикладеного сигналу, часова перехідна характеристика $f(t)$ та комплексний частотний спектр $\chi_1(\omega) - j\chi_2(\omega)$, де $\chi_1(\omega)$ та $\chi_2(\omega)$ – дійсна та уявна частини комплексної діелектричної сприйнятливості, відповідно, взаємно пов'язані між собою за допомогою перетворення Фур'є

$$\chi_1(\omega) = \int_0^{\infty} f(t) \cos(\omega t) dt, \quad \chi_2(\omega) = \int_0^{\infty} f(t) \sin(\omega t) dt \quad (1)$$

$$f(t) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \chi_1(\omega) \cos(\omega t) dt = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \chi_2(\omega) \sin(\omega t) dt \quad (2)$$

Оскільки часові вимірювання описують зміну струму з часом, то перехідна характеристика є функцією дійсної змінної $f(t)$ від дійсної змінної часу t . Частотний метод дослідження передбачає наявність двох амплітуд – синфазної $\chi_1(\omega)$ та зміщеної по фазі на $\pi/2$ щодо прикладеного гармонічного збудження $\chi_2(\omega)$ від змінної частоти ω , яка є дійсною величиною. Дві компоненти $\chi_1(\omega)$ та $\chi_2(\omega)$ частотного спектра не є незалежними і пов'язані між собою за допомогою співвідношення Крамерса - Кроніга. Та сама функція $f(t)$, яка описує часову залежність струму заряджання $i_c(t)$ під дією прикладеного електричного поля у вигляді сходинок, також описує часову залежність поляризації речовини $P(t)$ під дією дельта-функції заряджання. Тому перехідна характеристика за струмом $f(t)$ є одночасно імпульсною характеристикою за поляризацією $P(t)$.

Хоча перехідна характеристика та комплексний діелектричний спектр рівнозначно характеризують динаміку процесів поляризації у лінійних середовищах, експериментальні дослідження динамічних процесів у разі прикладання змінної напруги, тобто як залежностей від частоти, мають певні переваги перед дослідженнями в часовому просторі, якщо ці вимірювання не стосуються ділянки інфранізьких частот. Насамперед, це зумовлено відсутністю постійної складової, яка сильно обмежує точність вимірювань під час дослідження залежностей перехідного струму від часу. По-друге, перехідна характеристика, задана в часовому просторі, дуже часто на багато порядків зменшується з часом, що приводить до необхідності вимірювати малу величину струму, до того ж, на фоні відносно великої постійної складової. Залежність від частоти дійсної та уявної складових такого самого типу діелектричного відгуку є значно слабшою. Крім того, наявність постійної складової не накладає обмеження в разі вимірювань діелектричного відгуку матеріалу як залежності від частоти. Тому дуже часто перехідну характеристику матеріалу можна отримати на ширшому часовому діапазоні та з більшою точністю внаслідок розрахунку перетворення Фур'є від діелектричного відгуку, виміряного у формі частотного спектра.

У роботі розраховано часову перехідну характеристику струмів поляризації в високоомних кристалах GaSe, у яких спостерігають діелектричну дисперсію, пропорційну до ω^{n-1} , де $n \approx 0,8$, характерну для стрибкового переміщення носіїв заряду [3]. Крім того, запропонована методика визначення інтервалу часів, для яких розрахована перехідна характеристика достовірна з певною точністю.

Низькочастотний діелектричний спектр високоомних кристалів GaSe за різних температур показано на рис. 1 у формі комплексної ємності, яка пропорційна до комплексної діелектричної проникності через множник S/d , де S – площа контактів зразка у вигляді плоскопаралельної пластини; d – товщина зразка. Дійсна частина комплексної ємності зменшується з підвищенням частоти вимірювань пропорційно до степеневі залежності ω^{n-1} , де $n \approx 0,8$ та не сильно зростає з підвищенням температури. Така особливість цього типу спектра приводить до того, що його нахил у подвійних логарифмічних координатах дещо

збільшується з підвищенням температури, а спектр не можна звести до узагальненої форми внаслідок переміщення частотних залежностей, які відповідають різним температурам, що давало б змогу розширити частотний діапазон. На більшій ділянці уявної частини ємності домінують втрати, зумовлені провідністю на постійному струмі, які обернено пропорційні до частоти електричного поля.

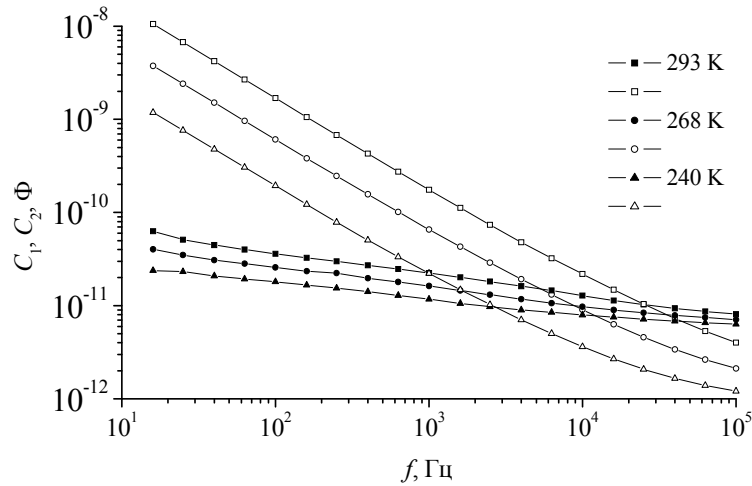


Рис. 1. Діелектричний спектр високоомних кристалів GaSe у формі комплексної ємності за різних температур. Заповнені і незаповнені символи відповідають дійсним та уявним складовим спектра, відповідно.

Розрахунок перехідної характеристики $f(t)$ виконаємо за допомогою перетворення Фур'є (2) для дійсної складової діелектричного спектра методом, описаним в [4]. Оскільки діелектричний спектр відомий тільки на певному частотному інтервалі від ω_{\min} до ω_{\max} то інтеграл Фур'є (2) розділимо на три частини:

$$f(t) = \frac{2}{\pi} \left\{ \int_0^{\omega_{\min}} C_1(\omega) \cos(\omega t) d\omega + \int_{\omega_{\min}}^{\omega_{\max}} C_1(\omega) \cos(\omega t) d\omega + \int_{\omega_{\max}}^{\infty} C_1(\omega) \cos(\omega t) d\omega \right\} \quad (3)$$

На проміжку від ω_{\min} до ω_{\max} значення функції $C_1(\omega)$ відоме в окремих точках з майже постійним кроком у логарифмічних координатах. Тому для обчислення інтеграла на цьому частотному проміжку проведемо апроксимацію експериментальних даних кубічним сплайном так, що

$$C_1(\omega) = a_{0,m} + a_{1,m}\omega + a_{2,m}\omega^2 + a_{3,m}\omega^3, \quad (4)$$

де m – номер інтервалу від частоти ω_{m-1} до ω_m . Після цього кожний з інтегралів на проміжку від ω_{m-1} до ω_m типу

$$a_i \int_{\omega_{m-1}}^{\omega_m} \omega^i \cos(\omega t) d\omega \quad (5)$$

можна взяти аналітично. Оскільки підінтегральна функція осцилює навколо нуля, то верхню межу інтегрування для другого інтеграла у виразі (3) треба брати дещо меншою, ніж ω_{\max} так, щоб забезпечити ціле число періодів на верхній частоті. Це особливо важливо для тих значень часу t , для яких другий інтеграл у виразі (2) містить невелику кількість осциляцій.

У разі розрахунку перехідної характеристики з експериментально отриманого частотного спектра за допомогою перетворення Фур'є важливо оцінити часовий інтервал на якому перехідна характеристика буде достовірною з певною точністю, оскільки експериментальний частотний спектр відомий тільки на обмеженому частотному діапазоні від ω_{\min} до ω_{\max} . З цією метою треба виконати оцінку можливих внесків до загальної суми у виразі (3) двох інтегралів на частотах від 0 до ω_{\min} та від ω_{\max} до ∞ , де форма частотного спектра невідома.

Для оцінки можливого відносного внеску високочастотного інтеграла (від ω_{\max} до ∞) оцінимо, до якої похибки приводить обмеження верхньої межі інтегрування одним або декількома періодами косинуса інтеграла Фур'є для спектра, пропорційного до $1/\sqrt{\omega}$. Для цього інтеграл Фур'є такого типу спектра розкладемо на два доданки:

$$\int_0^{\infty} \frac{\cos \omega t}{\sqrt{\omega}} d\omega = \int_0^{2\pi k/t} \frac{\cos \omega t}{\sqrt{\omega}} d\omega + \int_{2\pi k/t}^{\infty} \frac{\cos \omega t}{\sqrt{\omega}} d\omega \quad (6)$$

де k – більше від нуля ціле число. Числові оцінки за допомогою протабульованих значень інтегрального косинуса засвідчують, що вже при $k=1$, тобто в разі інтегрування в межах одного періоду, похибка буде менше 3%. Оскільки досліджуваний діелектричний спектр кристалів GaSe, пропорційний до ω^{n-1} , де $n \approx 0,8$, повільніше зменшується з підвищенням частоти порівняно зі спектром $\sim 1/\sqrt{\omega}$, то обмеження верхньої межі інтеграла одним періодом за незмінного характеру дисперсії приведе до ще меншої відносної похибки. Це дає змогу за мінімальне значення часу t для перехідної характеристики вибрати величину $2\pi/\omega_{\max}$, яка відповідає умові інтегрування в межах одного періоду підінтегрального косинуса.

Оцінку внеску низькочастотного інтеграла (від 0 до ω_{\min}) можна значно спростити, якщо обмежитися областю $\omega_{\min}t < 0,1$, для якої можна вважати, що $\cos(\omega t) \approx 1$. Така умова, крім того, може бути використана як верхня межа для часового інтервалу отриманої перехідної характеристики, оскільки перехідна характеристика для менших значень часу значно залежить від форми діелектричного спектра на частотах, менших від ω_{\min} . Тоді інтеграл на проміжку від 0 до ω_{\min} можна записати у вигляді

$$\int_0^{\omega_{\min}} C_1(\omega) d\omega = B \sin\left(\frac{n\pi}{2}\right) \int_0^{\omega_{\min}} \frac{d\omega}{\omega^{1-n}} = B \sin\left(\frac{n\pi}{2}\right) \frac{\omega_{\min}^n}{n} \quad (7)$$

де використано припущення, що характер дисперсії на частотах, нижчих від ω_{\min} , залишається незмінним і відповідає степеневій залежності від частоти з показником степеня, отриманим з експериментально виміряного діелектричного

спектра. В цьому випадку низькочастотний інтеграл (7) буде робити внесок у вигляді постійної складової, значення якої не залежить часу t , за умови $\omega_{\min}t < 0,1$. До того ж, значення інтеграла (7) мало залежить від форми діелектричного спектра на частотах нижче ω_{\min} .

Розрахована перехідна характеристика $f(t)$ високоомних кристалів GaSe за температури 293 К показана на рис. 2; вона отримана для випадків як без урахування внеску інтеграла на частотах нижче ω_{\min} , так і для двох випадків прогнозованої поведінки спектра на цих частотах – незмінного характеру дисперсії та незмінної ємності (нема дисперсії ємності при $\omega < \omega_{\min}$). Відповідно до особливостей дисперсії експериментального діелектричного спектра та інтервалу частот $16 \cdot 10^5$ Гц, на якому він відомий, перехідну характеристику можна отримати в часовому інтервалі $\sim 10^{-5} - 10^{-3}$ с. Можна стверджувати, що врахування інтеграла на частотах нижчих за ω_{\min} є необхідним, проте форма спектра на частотах від 0 до ω_{\min} незначно впливає на форму перехідної характеристики в довгочасовій ділянці, якщо нижня межа перехідної характеристики взята з умови $\omega_{\min}t < 0,1$.

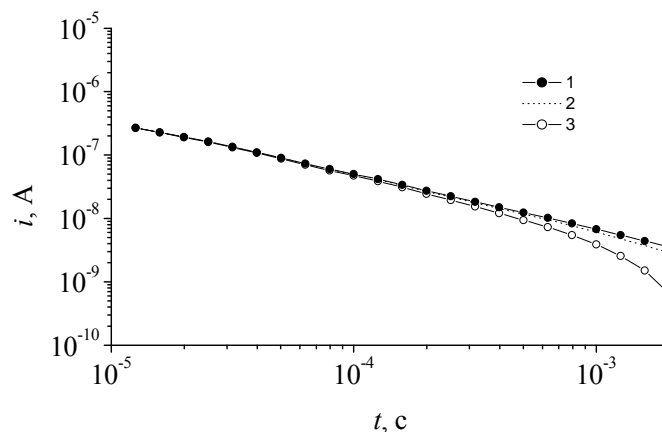


Рис. 2. Перехідна характеристика $f(t)$ високоомних кристалів GaSe при 293 К отримана з дійсної частини діелектричного спектра за допомогою перетворення Фур'є в разі різної поведінки спектра на частотах нижче ω_{\min} : 1 – характер дисперсії незмінний; 2 – дисперсії на частотах нижче ω_{\min} нема; 3 – відповідає перетворенню Фур'є без внеску інтеграла від 0 до ω_{\min} .

Перехідна характеристика поляризаційного струму у високоомних кристалах GaSe за трьох різних температур 240, 268 і 293 К, отримана з дійсної частини діелектричного спектра за допомогою перетворення Фур'є показана на рис. 3. У разі розрахунку припускали, що характер дисперсії на частотах нижче ω_{\min} є незмінним і відповідає степеневій залежності від частоти з нецілим показником, що є найбільш імовірним. Отримані перехідні характеристики дають підстави стверджувати, що перехідні струми незначно зростають з підвищенням температури, що відповідає характеру температурних залежностей діелектричних спектрів.

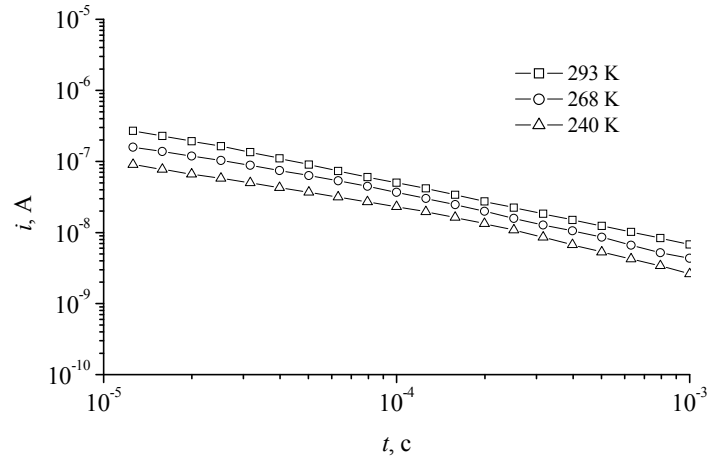


Рис. 3. Перехідна характеристика $f(t)$ високоомних кристалів GaSe за трьох різних температур, отримана з дійсної частини діелектричного спектра за допомогою перетворення Фур'є в разі найбільш імовірного припущення незмінного характеру дисперсії на частотах нижче ω_{\min} .

Степенева залежність діелектричного спектра, пропорційна до ω^{n-1} , де $n \approx 0,8$, відображена степеневу залежністю перехідної характеристики $\sim t^{-n}$, що позначено прямими лініями на графіку залежності логарифма струму від логарифма часу. Апроксимація діелектричних спектрів за допомогою сплайнів порівняно з аналітичними перетвореннями Фур'є степеневих залежностей з нецілими показниками дає змогу у розрахованих перехідних характеристиках зберегти особливості, які можуть бути зумовлені як внесками інших адитивних складових меншого порядку, так і можливими відхиленнями від емпіричних законів, які використовують у низькочастотній діелектричній спектроскопії.

Отже, апроксимація діелектричних спектрів кубічними сплайнами з подальшим аналітичним розрахунком перетворення Фур'є дає змогу отримати перехідну характеристику $f(t)$ високоомних кристалів GaSe, діелектричні спектри яких пропорційні до ω^{n-1} , де ω – кутова частота, $n \approx 0,8$. Запропоновано метод для оцінки часового інтервалу, на якому перехідна характеристика є достовірною з певною точністю, відповідно до частотного інтервалу, на якому відомо діелектричний спектр. Розрахунок за допомогою апроксимації сплайнами дає змогу зберегти на перехідній характеристиці незначні особливості спектра порівняно з аналітичними перетвореннями Фур'є феноменологічних виразів, які використовують у діелектричній спектроскопії.

1. Jonscher A.K. Universal Relaxation law. London: Chelsea Press, 1996. 415 p.
2. Dissado L. Dielectric Response in book Kasap S., Capper P. Springer Handbook of Electronic and Photonic Materials. New-York: Springer, 2006. P. 187 - 212.
3. Fl'unt O., Jonscher A., Stakhira J. Low-frequency dielectric properties of high-resistivity GaSe layered crystals // International conference Dielectric and Related Phenomena (DRP'98). Bialsko-Biala (Poland), 1998. P. 134.

4. Флюнт О. Розрахунок перехідної характеристики низькоомних шаруватих кристалів GaSe // Вісник Львів. ун-ту. Сер. фіз. 2009. Вип. 44. С. 226 - 233.

TIME DOMAIN TRANSITION DIELECTRIC RESPONSE OF HIGH-RESISTIVITY GaSe LAYERED CRYSTALS

O. Flunt

*Ivan Franko National University of L'viv,
Dragomanov Str. 50, UA-79005 L'viv, Ukraine
flunt@electronics.wups.lviv.ua*

Dielectric response in time domain of high-resistivity GaSe layered crystals characterized by low-frequency dielectric spectra peculiar for hopping conduction systems of ω^{n-1} type, where ω is angular frequency, $n \approx 0.8$, have been calculated using Fourier transformation. The calculation has been conducted on the basis of experimentally measured low-frequency dielectric spectra applying earlier proposed method using approximation of experimental data by cubic-splines with following analytical calculation of integrals. Temporal range of reliability of the transition characteristic with certain accuracy has been appreciated.

Key words: dielectric spectra, transition characteristic, layered crystal, gallium selenide.

ПЕРЕХОДНАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ВИСОКООМНЫХ СЛОИСТЫХ КРИСТАЛЛОВ GaSe, ОБУСЛОВЛЕННАЯ ТОКАМИ ПОЛЯРИЗАЦИИ

О. Флюнт

*Львовский национальный университет имени Ивана Франко
ул. Драгоманова, 50, 79005, Львов, Украина
flunt@electronics.wups.lviv.ua*

Рассчитано временную переходную характеристику высокоомных слоистых кристаллов GaSe, для которых свойственна диэлектрическая дисперсия пропорциональная ω^{n-1} , где ω – угловая частота, $n \approx 0,8$, характерная для прыжкового перемещения носителей электрических зарядов. Расчет проведен на основе экспериментальных низкочастотных диэлектрических спектров ранее предложенным методом, в основе которого аппроксимация экспериментальных данных с помощью кубических сплайнов с последующим аналитическим расчетом интегралов. Проведено оценку временного интервала, на котором переходная характеристика достоверна с заданной точностью.

Ключевые слова: диэлектрический спектр, переходная характеристика, слоистый кристалл, селенид галлия.

Стаття надійшла до редколегії 14.02.2010
Прийнята до друку 15.06.2010