

УДК 53.096; 538.956

## ОСОБЛИВОСТІ ТЕМПЕРАТУРНОЇ ЗАЛЕЖНОСТІ ДІЕЛЕКТРИЧНОЇ ПРОНИКНОСТІ ВИСОКООМНИХ КРИСТАЛІВ GaSe У РАМКАХ МОДЕЛІ РОЗПОДІЛУ ЕФЕКТИВНИХ ДИПОЛІВ ЗА ЧАСАМИ РЕЛАКСАЦІЇ

О. Флюнт

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

Отримано та проаналізовано розв'язки системи диференціальних рівнянь, записаних для системи термоактивованих ефективних диполів, розподілених за часами релаксації в широкому часовому діапазоні. Розподіл диполів у системі відповідав діелектричним спектрам, характерним для систем зі стрибкоподібним переміщенням носіїв електричного заряду. З'ясовано, що, відповідно до запропонованої моделі, температурна залежність діелектричної проникності та діелектричних втрат у діапазоні домінування дисперсії типу  $\omega^{-(1-n)}$ , де  $\omega$  – циклічна частота,  $1-n \approx 0,2$ , підлягають оберненому закону Ареніуса  $\exp(T/T_0)$ , де  $T_0$  – стала, яка має розмірність температури. Модель пояснює збільшення параметра  $T_0$  у разі підвищення частоти прикладеного до зразка змінного електричного поля. Експериментальні дані, отримані на високоомних кристалах GaSe, підтверджують прогнозований характер температурних залежностей.

*Ключові слова:* діелектричний спектр, система зі стрибкоподібним переміщенням зарядів, обернений закон Ареніуса.

Діелектричний спектр матеріалу, в інтервалі домінування якого діелектрична проникність залежить від частоти за законом  $\omega^{-(1-n)}$ , де  $\omega$  – циклічна частота, а показник степеня  $1-n$  менший від 0,3, але не дуже малий, переважно пояснюють процесами локалізації носіїв електричного заряду [1–3]. Дипольні моменти в таких середовищах виникають унаслідок швидкого порівняно з часом перебування на центрах локалізації, стрибкоподібного переміщення квазілокалізованих носіїв електричного заряду. Є низка фізичних моделей, які пояснюють залежність діелектричної проникності та діелектричних втрат середовища від частоти змінного електричного поля, пропорційну до степеневому закону  $\omega^{-(1-n)}$ , де  $1-n \approx 0,2$  [4–9]. Переважно степеневу залежність від частоти отримують унаслідок врахування розподілу за енергіями центрів локалізації носіїв електричного заряду. Проте відомі фізичні моделі прогнозують різні за характером температурні залежності як абсолютного значення частотно-залежної діелектричної проникності, так і показника

степеня  $n$ . Водночас можна сформулювати спільні особливості поведінки низькочастотних діелектричних спектрів типу  $\omega^{-(1-n)}$ , де  $1-n \approx 0,2$ , які отримані внаслідок опрацювання великої кількості експериментальних результатів, незалежно від досліджуваного класу матеріалів (електронні й іонні напівпровідники, аморфні та полікристалічні матеріали, органічні композити та ін.) [10]. Такі особливості, зокрема, стосуються характеру температурних залежностей параметрів, які входять у вирази для феноменологічного опису низькочастотних діелектричних спектрів.

У статті [11] запропоновано фізичну модель, сформульовану на підставі дискретного розподілу концентрації ефективних диполів за часами релаксації, які змінюють власні часи релаксації відповідно до термоактиваційного закону в разі зміни температури. Хоча часи релаксації елементарних диполів уже апіорі розподілені, взаємодія між елементарними диполями, найімовірніше, суттєво впливає на характер цього розподілу. Тому, згідно з запропонованою моделлю, розподіл за часами релаксації стосується саме ефективних диполів, а не елементарних, кожний з яких є результатом окремих стрибків квазілокалізованих носіїв заряду. Тому експериментально спостережувані макроскопічні параметри досліджуваної системи, швидше за все, є характеристиками певних утворень на основі елементарних диполів. Запропонована раніше модель [11] дала змогу пояснити збільшення частотно-залежної діелектричної проникності та збільшення показника степеня  $1-n$  у разі підвищення температури. Отримані коефіцієнти температурної залежності частотно-залежної діелектричної проникності та коефіцієнт температурної залежності показника степеня  $n$  за порядком величини збіглися з експериментальними даними, які отримані з низькочастотних діелектричних спектрів високоомних кристалів GaSe. Нижче знайдено розв'язки записаної в [11] системи диференціальних рівнянь та проаналізовано характер прогнозованих температурних залежностей діелектричної проникності й діелектричних втрат системи термічно активованих ефективних диполів з розподілом часів релаксації у широкому часовому інтервалі, який відповідає діелектричному спектру типу  $\omega^{-(1-n)}$ , де  $1-n \approx 0,2$ .

**Розв'язування диференціальних рівнянь для системи з наперед заданою степеневою формою діелектричного спектра.** Отримана в [9] система диференціальних рівнянь для системи ефективних диполів, які розподілені за часами релаксації відповідно до степеневого закону, має вигляд

$$\begin{cases} \frac{dC_2}{C_2} = (1-n) \ln\left(\frac{f_0}{f}\right) \frac{dT}{T}, \\ dn = -(1-n) \frac{dT}{T} \end{cases}, \quad (1)$$

де  $C_2$  – уявна частина комплексної ємності, залежна від частоти  $f$  і температури  $T$ ;  $f_0$  – частота коливачів кристалічної ґратки порядку  $10^{12}$  Гц. Система рівнянь (1) записана за умови, що показник степеня  $1-n$  набуває невеликих значень, менших від 0,3. Уявна частина комплексної ємності  $C_2$  пропорційна до уявної частини діелектричної проникності (діелектричних втрат)  $\epsilon_2$  за виразом  $C_2 = \epsilon_2 \epsilon_0 S/d$ , де  $\epsilon_0$  – універсальна діелектрична стала;  $S$  – площа обкладок плоскопаралельного конденсатора;  $d$  – відстань

між обкладками (товщина зразка). Розв'язок другого рівняння системи, яке описує температурну залежність показника степеня  $n$ , можна записати у вигляді

$$1 - n = \frac{T}{T_n}, \quad (2)$$

де  $T_n$  – стала, яка має розмірність температури. Цей розв'язок підтверджує часто спостережувану експериментально лінійну залежність  $n$  від температури [5, 6]. Якщо вважати, що при  $T=200$  К  $1-n=0,2$ , то можна отримати приблизне значення  $T_n=10^3$  К. Після підстановки другого рівняння системи (1) в перше отримаємо диференціальне рівняння

$$\frac{dC_2}{C_2} = \ln\left(\frac{f_0}{f}\right) \frac{dT}{T_n}, \quad (3)$$

розв'язком якого є вираз

$$C_2 = A \exp\left\{\ln\left(\frac{f_0}{f}\right) \frac{T}{T_n}\right\} = A \exp\left(\frac{T}{T_0}\right) = A \exp\left\{\frac{T}{T_n \ln^{-1}(f_0)}\right\} \frac{1}{f^{T/T_n}}, \quad (4)$$

де  $A$  – стала, а  $T_0$  – функція частоти прикладеного електричного поля. У ході його отримання враховано, що приріст функції  $C_2$  в лівій частині рівняння зумовлений лише зміною температури. Важливо зазначити, що температурна залежність отриманого розв'язку (4) відповідає оберненому закону Ареніуса, причиною спостереження якого є термоактиваційна зміна часів релаксації ефективних диполів у системі з їхнім розподілом у широкому часовому інтервалі.

Вираз

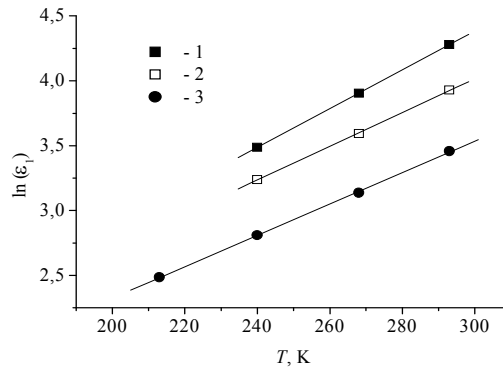
$$T_0 = \frac{T_n}{\ln\left(\frac{f_0}{f}\right)} \quad (5)$$

описує характер залежності параметра  $T_n$  від частоти змінного електричного поля. Згідно з ним, значення параметра  $T_0$ , який фактично отримують з температурних залежностей діелектричної проникності в діапазоні домінування дисперсії типу  $\omega^{-0,2}$ , набуває значення від 39 до 62 К у разі зміни частоти від 10 до  $10^5$  Гц.

Можна ввести ще третій параметр  $T_B = T_n \ln^{-1}(f_0)$  з розмірністю температури, який характеризує температурну поведінку коефіцієнта, що є перед частотно-залежною частиною розв'язку системи рівнянь (1). Відповідно до розв'язку (4), параметр  $T_B \approx 36$  К не залежить від частоти електричного поля.

Розв'язок (4) дає змогу описати характер температурної залежності як дійсної, так і уявної частин комплексної ємності, оскільки вони пов'язані між собою за допомогою співвідношення Крамерса–Кроніга. У випадку степеневі залежності розв'язку від частоти взаємозв'язок між дійсною та уявною частинами можна виразити через універсальний степеневий закон релаксації [1, 2], який відображає умови, закладені у співвідношенні Крамерса–Кроніга. Температурна залежність діелектричної проникності відповідно до оберненого закону Ареніуса підтверджена експериментальними

результатами, отриманими на високоомних кристалах GaSe, що зображено на рисунку. Зменшення кута нахилу прямих, якими апроксимовані експериментальні залежності у напівлогарифмічних координатах, у разі підвищення частоти змінного електричного поля свідчить про частотну залежність параметра  $T_0$ .



Температурна залежність натурального логарифма діелектричної проникності високоомного кристала GaSe, виміряної на трьох різних частотах, Гц:  
1 – 25, 2 – 100, 3 – 1 000.

**Розв'язування диференційного рівняння без попереднього визначення форми діелектричного спектра.** Система диференціальних рівнянь (1) та її розв'язки (2)–(5) отримані за попередньої умови, що діелектричний спектр підлягає степеневій залежності від частоти з частотно-незалежним показником степеня  $-(1-n)=0,2$ . Показник степеня  $1-n$  характеризує нахил діелектричного спектра  $s$  у подвійних логарифмічних координатах, тому можна записати, що

$$s = -(1-n) = -\frac{\partial[\log(C_2)]}{\partial[\log(f)]} = -\frac{\partial[\ln(C_2)]}{\partial[\ln(f)]}. \quad (6)$$

У загальному випадку розв'язок першого рівняння системи (1) не обов'язково повинен відповідати степеневій залежності від частоти. Тому надалі знайдемо розв'язок першого рівняння системи (1), не домагаючись від нього виконання умови незалежності  $s = -(1-n)$  від частоти. Це дасть змогу знайти розв'язки з іншими законами дисперсії (відмінними від степеневих залежностей), якщо такі розв'язки існують. Для цього підставимо вираз (6) у перше рівняння системи (1) та зведемо його до вигляду

$$\Delta \ln(C_2) = -\frac{\partial[\ln(C_2)]}{\partial[\ln(f)]} \ln\left(\frac{f_0}{f}\right) \Delta \ln(T). \quad (7)$$

Надалі першим аргументом функції  $\ln(C_2)$  будемо вважати  $\ln(f)$ , другим –  $\ln(T)$ . Оскільки в першому рівнянні системи (1) розглядають зміну  $C_2$ , пов'язану лише зі зміною температури, то його можна записати у вигляді

$$\frac{\partial \ln(C_2)}{\partial \ln(T)} + \frac{\partial[\ln(C_2)]}{\partial[\ln(f)]} \ln\left(\frac{f_0}{f}\right) = 0. \quad (8)$$

Повний інтеграл цього рівняння має вигляд

$$\ln(C_2) = a \left\{ \ln(T) + \ln \left[ \ln \left( \frac{f_0}{f} \right) \right] \right\}, \quad (9)$$

де  $a$  – стала. Зведемо цей вираз до вигляду

$$C_2 = \left\{ T \ln \left( \frac{f_0}{f} \right) \right\}^a = T^a \ln^a \left( \frac{f_0}{f} \right) \approx (29T)^a f^{-0,05a}. \quad (10)$$

При  $a = 4$ , оскільки  $\ln(f_0/f) \approx 29 f^{-0,05}$ , отриманий розв'язок достатньо точно залежить від частоти пропорційно до бстепеневому закону  $\omega^{-0,2}$  у широкому частотному діапазоні. Тому можна стверджувати, що розв'язок (10) відповідає саме степеневій залежності уявної частини ємності  $C_2$  від частоти. На відміну від розв'язку (4), розв'язок (10) прогнозує зростання діелектричних втрат відповідно до степеневому закону з підвищенням температури. Проте запровадження температурної залежності показника степеня  $a$  дає змогу одночасно ввести як температурну залежність  $C_2$  згідно з оберненим законом Ареніуса, так і температурну залежність показника степеня  $1-n$ . Розв'язок (10), отриманий без попереднього визначення форми спектра та відповідного розподілу ефективних диполів за часами релаксації, свідчить про певну збіжність та стійкість степеневій формі спектра в рамках запропонованої фізичної моделі та може бути певним поясненням степеневій залежності діелектричної проникності від частоти.

Отже, згідно з розглянутою моделлю, температурна залежність частотно-залежної діелектричної проникності в області домінування спектра, характерного для матеріалів зі стрибкоподібним переміщенням квазілокалізованих носіїв електричного заряду, підлягає оберненому закону Ареніуса  $\exp(T/T_0)$  з параметром  $T_0$ , який залежить від частоти прикладеного змінного електричного поля. Відповідність температурної залежності діелектричної проникності та діелектричних втрат оберненому закону Ареніуса в середовищі з дисперсією типу  $\omega^{-0,2}$ , де  $\omega$  – циклічна частота, є результатом термоактиваційної зміни часів релаксації ефективних диполів у середовищі з їхнім розподілом у широкому часовому діапазоні.

1. *Jonscher A.K.* Dielectric relaxation in solids // *J. Phys. D: Appl. Phys.* – 1999. – Vol. 32. – P. R57–R70.
2. *Jonscher A.K.* Universal Relaxation law. London: Chelsea Press, 1996. – 415 p.
3. *Dissado L.* Dielectric Response in book *Kasap S., Capper P.* Springer Handbook of Electronic and Photonic Materials. New-York: Springer, 2006. – P. 187–212.
4. *Мотт Н., Дэвис Э.* Электронные процессы в некристаллических веществах: в 2 т. М.: Мир, 1982.
5. *Elliott S.R.* A.c. conduction in amorphous halcogenide and pnictide semiconductors // *Advances in Physics.* – 1987. – Vol. 36. – P. 135–218.
6. *Giuntini J.C., Zanchetta J.V., Jullien D.* et al. Temperature dependence of dielectric losses in chalcogenide glasses // *J. Non-Cryst. Solids.* – 1981. – Vol. 45. – P. 57–62.
7. *Pike G.E.* AC conductivity of scandium oxide and a new hopping model for conductivity // *Phys. Rev. B.* – 1972. – Vol. 6. – P.1572–1580.

8. *Almond D.P., Duncan G.K., and West A.R.*, The determination of hopping rates and carrier concentrations in ionic conductors by a new analysis of ac conductivity // *Solid State Ionics*. – 1983. – Vol. 8. – P.159–164.
9. *Гудаев О.А.* Температурная зависимость прыжковой проводимости на переменном токе // *Физ. тверд. тела*. 1993. Т. **35**. С.1268-1274.
10. *Dyre J.C., and Schröder T.B.*, Universality of ac conduction in disordered solids // *Reviews of Modern Physics*. – 2000. – Vol. 72. – P. 873–892.
11. *Флюнт О.* Застосування моделі дискретного розподілу часів релаксації для опису діелектричної дисперсії у високоомних кристалах GaSe // *Теор. електротехніка*. – 2010. – Вип. 61. – С. 60–68.

**THE FEATURES OF TEMPERATURE DEPENDENCE OF DIELECTRIC  
CONSTANT OF HIGH-RESISTIVITY GaSe CRYSTALS WITHIN THE MODEL OF  
DISTRIBUTION OF EFFECTIVE DIPOLES BY RELAXATION TIMES**

**O. Flunt**

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

The solutions of the differential equations written to explain the temperature behavior of dielectric spectra in the systems with distribution of the effective dipoles in wide temporal range have been calculated and analyzed. The distribution of effective dipoles corresponds to the dielectric spectra, characteristic for systems with hopping movement of electric charge carriers. According to the proposed model, the temperature dependence of dielectric constant in the range dominating by the dispersion describing by law  $\omega^{-(1-n)}$ , where  $\omega$  – circular frequency,  $1-n \approx 0,2$ , obeys the inverse Arrhenius law  $\exp(T/T_0)$ . Inverse Arrhenius law is stipulated by thermally activated changes of relaxation times of the effective dipoles in the systems with distributed relaxation times according to the power law with small value of  $n$ . The model explains the frequency increase of  $T_0$  with increasing frequency. The experimental data measured on high-resistivity GaSe crystals confirm the predictable dependences.

*Key words:* dielectric spectra, hopping charge carrier system, inverse Arrhenius law.

**ОСОБЕННОСТИ ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ  
ПРОНИЦАЕМОСТИ ВЫСОКООМНЫХ КРИСТАЛЛОВ GaSe В РАМКАХ  
МОДЕЛИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ЭФФЕКТИВНЫХ ДИПОЛЕЙ ПО ВРЕМЕНАМ  
РЕЛАКСАЦИИ****О. Флюнт**

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

Получено и проанализировано решения системы дифференциальных уравнений, записанных для системы термоактивированных эффективных диполей, распределенных по временам релаксации в широком временном диапазоне. Распределение диполей соответствовало диэлектрическим спектрам, присущим системам с прыжкообразным перемещением носителей электрического заряда. Согласно предложенной модели, температурная зависимость диэлектрической проницаемости в интервале доминирования дисперсии типа  $\omega^{-(1-n)}$ , где  $\omega$  – круговая частота,  $1-n \approx 0,2$ , подчиняется обращенному закону Аррениуса  $\exp(T/T_0)$ , где  $T_0$  – постоянная с размерностью температуры. Модель объясняет увеличение параметра  $T_0$  при возрастании частоты переменного электрического поля. Экспериментальные результаты, полученные на высокоомных кристаллах GaSe, подтверждают прогнозируемые температурные зависимости.

*Ключевые слова:* диэлектрический спектр, система с скачкообразным перемещением зарядов, обращенный закон Аррениуса.

Стаття надійшла до редколегії 16.05.2011

Прийнята до друку 31.05.2011